

令和 2 年 6 月 30 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2019

課題番号：15H03790

研究課題名(和文) 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

研究課題名(英文) Unimolecular n-bit memory and molecular wire with variable resistivities:
Proposal of new molecular design and prototype construction

研究代表者

鈴木 孝紀 (Takanori, Suzuki)

北海道大学・理学研究院・教授

研究者番号：70202132

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：中性の電子供与体とカチオン種の相互変換に際してC-C結合の可逆な形成/切断や非常に大きな分子構造変化の起こるdyrex系は、従前の酸化還元系と比べて、開殻中間体の定常濃度が低いこと、及び、酸化電位と還元電位の差異が大きく電気化学的安定性を有すること、という2つの特徴を持つ。これらは電子授受前後の大きな構造変化に基づく特性であり、個々の分子が1ビットを担う単一分子メモリとなり得る。本研究では、dyrex系を共役鎖で拡張した分子が、電子授受で共役のON/OFFスイッチングな“可変抵抗型分子ワイヤ”や“nビットメモリ”となり得ることを、そのプロトタイプの構築と特性調査から明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現代社会では、ほぼすべての情報蓄積が電子記録媒体に為され、また保存すべき情報量は日々増大している。現存の半導体技術の下でも、記録媒体容量の増大達成の努力が続けられているが、将来の革新的な技術開発によるブレークスルーを実現が必要である。本研究は、化学の世界で扱える最小の単位である分子を、1ビット(0/1)と定義する単一分子メモリを提案し、その目的に供する重要な候補となる物質群の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：The dynamic redox (dyrex) systems undergo reversible bond formation/cleavage upon electron transfer. This characteristic feature provides those redox systems with electrochemical bistability, by which oxidation of the donor and reduction of the cationic species occur at difference potentials. Such separation prevents the exchange of electrons between the neutral state and the cationic state, whereas the activation energy for the corresponding process in ordinary redox pairs is negligible. Thus, bistability in dynamic redox pairs can lead to their use in unimolecular memory because one molecule can be considered to be one digit if the two redox states are assigned values of 0 and 1 (e.g., the neutral donor is 0 and the cationic state is 1). We have developed several promising dyrex systems in this work, which would be used as prototypes for developing advanced molecular memory unit.

研究分野：有機化学

キーワード：酸化還元 分子素子 分子メモリ 構造有機化学 物理有機化学 電子移動 動的酸化還元 構造変化

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

有機電子系は構造の多様性や電子状態の多面性のために様々な特性を有し、人類が今日享受しているエレクトロニクス分野でも大きな活躍を見せている。特に、修飾の容易さに基づく特性の fine-tunability は、物質開発に際して有機電子系が、今後中心的な素材として益々その地位を高めていくことを期待させる。分子エレクトロニクスは、ナノスケールでの動作を実現できる近未来デバイス開発につながる研究分野であり、分子メモリや分子ワイヤについての研究が続けられている。

一方、現代社会では、ほぼすべての情報蓄積が電子記録媒体に為され、また保存すべき情報は日々増大している。現存の半導体技術の下でも、記録媒体容量の増大達成の努力が続けられているが、将来の革新的な技術開発によるブレークスルーを実現するため、化学の世界で扱える最小の単位である分子を、1ビット(0/1)と定義する単一分子メモリを提案し、その目的に供する問題解決を担う重要な候補となる物質群の開発を行うことが急務である。

本研究では、分子エレクトロニクスに対して構造有機化学的アプローチを行い、分子エレクトロニクスの新たな可能性を提示し、そのプロトタイプ的设计と合成、及びその特性の調査を行う。当初より、確立された概念の下での「実用化にむけた分子の改善やデバイス化」は、本研究には含めないこととしていた。これは、構造有機化学や物性有機化学を専門とする申請者が、最も得意とする部分について貢献することが、最終的には、分子エレクトロニクス研究分野の発展に最も有益と考える為である。

2. 研究の目的

エレクトロニクスという立場からは、有機電子型メモリユニットに於ける 0/1 の変換には、電気化学的信号を利用することが望ましい。繰り返し性を考慮すると、TTF のような可逆な酸化還元対がその候補となり、中性状態を 0、荷電状態を 1 に帰属することになる。しかし、従来の可逆な酸化還元系は電気化学的双安定性を持たない。即ち、中性分子が荷電状態となる電位(e.g. TTF の酸化電位)と荷電状態が中性分子となる電位(e.g. カチオンラジカルの還元電位)が等しく、隣接する骨格間での容易な電子交換やリンカーを通じた電荷の非局在化が起るため、酸化還元骨格をメモリユニットとして用いることは不可能である。

一方我々が独自に開発してきた dyrex 系(動的酸化還元系)では、電子授受に際して可逆な C-C 結合形成と切断が併発することで高い電気化学的双安定性を持ち、中性分子と荷電状態の電子交換が起らないという特殊な状況を実現できる。これは、0/1 の変換に電気化学的信号を利用可能なメモリユニットとして、dyrex 系が最適であることを意味する。また、結合形成と切断という現象により、相互変換の二電子授受がほぼ同時に起るため、開殻型の中間体の寿命は無視できるほど小さい。これは開殻種の関与する副反応を抑制できるという意味で、可逆性の向上につながる。更に、相互変換する二状態では、電荷が 0 及び +2 のように大きく異なる為、個々の dyrex 骨格をメモリユニットとした際に 0/1 の区別がしやすいという特徴も合わせ持つ。

本研究は、dyrex 系骨格を用いて、新たな作用機序にて動作する「有機電子系の分子メモリ設計指針の提案」と「プロトタイプ分子の構築とその基本動作達成」を通じて、「単一有機分子 n ビット」という新概念を確立することを目的としている。

3. 研究の方法

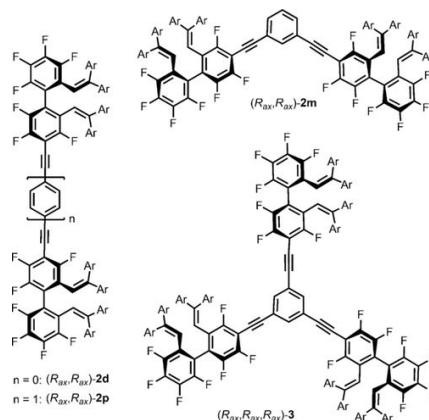
分子軌道計算(DFT法)によるサポートをしながら新たな dyrex 系の分子デザインをデザインし、多段階合成したサンプルについて、その酸化還元特性を電気化学測定(サイクリックボルタモグラフィー)で明らかにする。ジカチオン状態での単離精製後、中性状態と共に構造解析(X線、NMR)を行う。設計された多くの分子は、電子授受に際して劇的な色調の変化するエレクトロクロミズムを示すことが予想され、その挙動については、スペクトロエレクトログラムの測定(電解時の UV-Vis-NIR 変化)で明らかにする。

4. 研究成果

(1) 当初の研究目的/計画に沿った研究成果

ダイアド、トライアド型 dyrex 系の構築

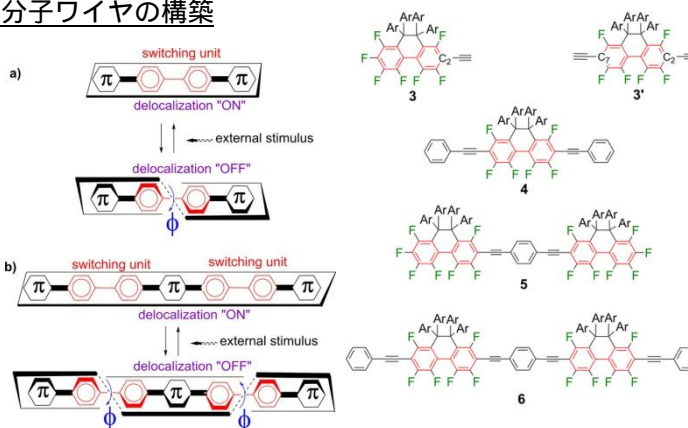
Assembly of an Axially Chiral Dynamic Redox System with a Perfluorobiphenyl Skeleton into Dumbbell- or Tripod-type Electron Donors H. Tamaoki, R. Katoono, K. Fujiwara, T. Suzuki, *Angew. Chem. Int. Ed.* 2016, 55, 2582-2586. [DOI: 10.1002/anie.201510935]



上記の論文で発表した成果は、パーフルオロビフェニル型骨格にジアリールエチニル基が2つ連結された dyrex 系の設計/合成とその集積によるダイアド(2量体) トライアド(3量体) 分子の構築に関するものであり、複数の dyrex 系連結に際して、菌頭反応など様々なクロスカップリング反応が有効であることが示された。また、スペクトロエレクトログラムの測定から、合成された化合物の中の個々の dyrex 系部分が独立して電子授受を行うことが示された。これは、1分子 n-bit 型分子メモリに必要な要件を満たしている。

リニア型連結分子の抵抗可変型分子ワイヤの構築

Molecular Wires with Controllable π -Delocalization Incorporating Redox-Triggered Conjugated Switching Units. W. Nojo, H. Tamaoki, Y. Ishigaki, R. Katoono, K. Fujiwara, T. Fukushima, T. Suzuki **ChemPlusChem** 2019, 84, 634-642. [DOI: 10.1002/cplu.201800341]

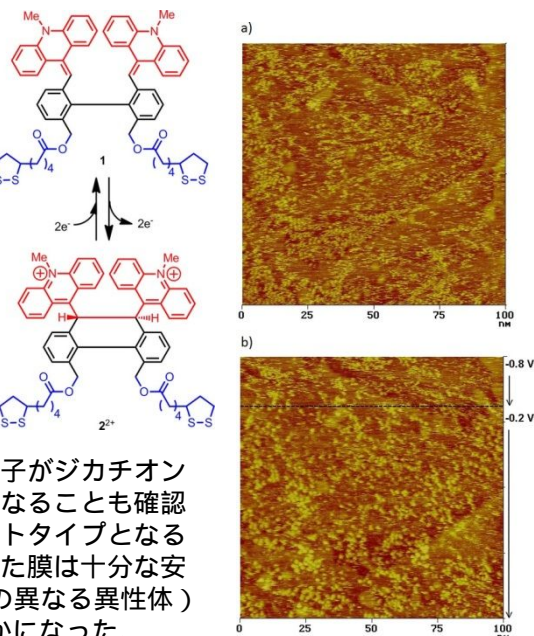


上記の論文で発表した成果はパーフルオロビフェニル型骨格を持つヘキサフェニルエタン型の dyrex 系をユニットとし、それを複数直線的に連結したものである。酸化還元特性からは、各ユニットが独立して電子授受を行うことが示され、基本ユニットの中性ならびにジカチオン状態での X 線構造解析から、電子授受によって大きくねじれ角が変化することから、フェニレン部位を通じた共役の ON/OFF スwitching が可能であることが示され、それは、長い共役の可能な分子のスペクトロエレクトログラムの測定から裏付けられた。

金属表面で分子膜形成能を持つ dyrex 系の構築と STM による表面観察、分子膜の dyrex 反応

Organic Molecular Layer with High Electrochemical Bistability: Synthesis, Structure, and Properties of a Dynamic Redox System with Lipoate Units for Binding to Au(111), E. Ohta, H. Uehara, Y. Han, K. Wada, H. Noguchi, R. Katoono, Y. Ishigaki, H. Ikeda, K. Uosaki, T. Suzuki, **ChemPlusChem**, 2017, 82, 1043-1047 [DOI: 10.1002/cplu.201600649]

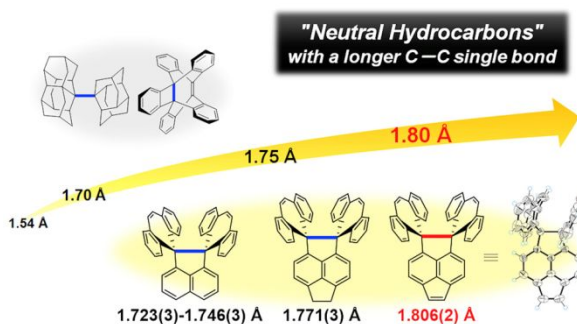
上記の論文で発表した成果は、分子にリポ酸部を2つ連結した dyrex 系の合成とその分子膜形成、並びに分子膜の STM 観察と電気化学応答に関するものである。長距離的な配列の制御はできなかったものの、各分子が輝点として観測され、また膜のままで酸化反応を行うことで、分子がジカチオンに変換されると共に、より明るさの増した輝点となることも確認されている。この分子は、単一分子メモリのプロトタイプとなるものである。この際、金(111)面上に形成された膜は十分な安定性を持つ一方、イソリポ酸(ジスルフィド位置の異なる異性体)を連結した類縁体では安定性が低いことも明らかになった。



新たな dyrex 骨格の構築を目指した炭化水素系分子の構築

* Longest C-C Single Bond among Neutral Hydrocarbons with a Bond Length beyond 1.8 Å, Y. Ishigaki, T. Shimajiri, T. Takeda, R. Katoono, T. Suzuki, **Chem**, 2018, 4, 795-806 (2018) [DOI: 10.1016/j.chempr.2018.01.011]

これまでジカチオンの安定化に窒素や酸素などのヘテロ原子の供与性効果を利用してきたが、上記の論文で発表した成果は、



それが必須では無いことを示した。即ち、非常に嵩高いジベンゾシクロヘプタトリエンがスピロ型に結合した炭化水素分子が、新たな dyrex 系となることが明らかとなった。また、この分子内に存在する C-C 結合が、世界最長であることが示され、別の観点でも周辺領域に大きなインパクトを与えた。

合わせて、テトラアリーールアントラキノジメタン型骨格を新たな dyrex 系分子のデザインに用いることで、酸化還元挙動を熱や光で制御できる系に展開することができた(下記論文)。特に、光による活性化/熱による不活性化を示す分子に加え、熱による活性化が起こる分子を開発できたことで、分子設計によって、様々な機能を付与できることが実証された。

*Photo- and Thermal Interconversion of Multiconfigurational Strained Hydrocarbons Exhibiting Completely Switchable Oxidation to Stable Dicationic Dyes. Y. Ishigaki, Y. Hayashi, T. Suzuki *J. Am. Chem. Soc.* 2019, 141, 18293-18300. [DOI: 10.1021/jacs.9b09646]

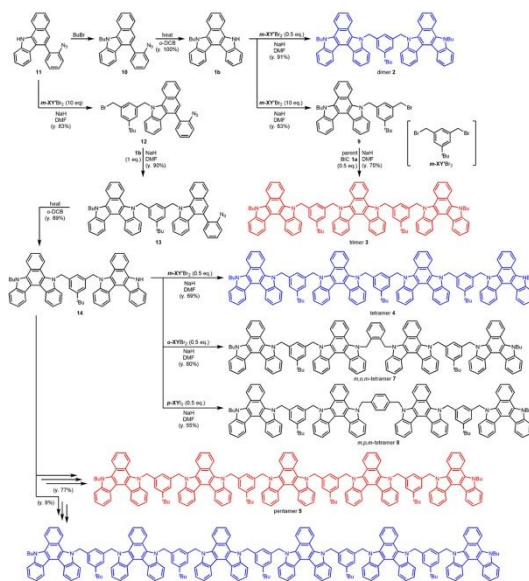
*Switching of Redox Properties Triggered by Thermal Equilibrium between Closed-shell Folded and Open-shell Twisted Species. Y. Ishigaki, T. Hashimoto, K. Sugawara, S. Suzuki, T. Suzuki, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2020, 59, 6581-6584 [DOI: 10.1002/anie.201916089]

(2) 当初の計画を超えた研究成果

非共役型連結された酸化還元ユニットの構造変化を伴う伝導パス形成

* Selective Formation of a Mixed valence State from Linearly bridged Oligo(aromatic diamines): Drastic Structural Change into a Folded Columnar Stack for Half filled Polycations. W. Nojo, Y. Ishigaki, T. Takeda, T. Akutagawa, T. Suzuki, *Chem. Eur. J.* 2019, 25, 7759-7765. [DOI: 10.1002/chem.201901272]

上記の論文で発表した成果は、安定なカチオン種を与える電子供与性ユニットが非共役的に連結されたオリゴマーに於いて、適切なリンカーを用いることで分子が酸化後にスタック構造へと変化し、伝導パスを形成できることを示した。酸化前は分子は長く伸びた構造をしていることから、ユニット内の構造変化の伴う dyrex 系とは異なり、ユニット間の相対的な配置を電子授受で制御するという、super-dyrex 系への展開を可能にした。



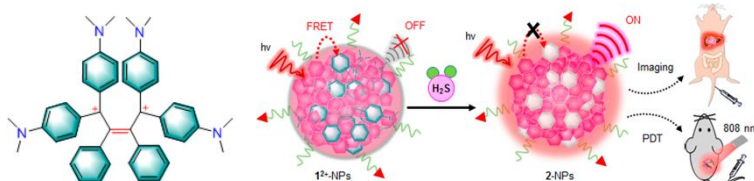
NIR 吸収を示す共役ジカチオン型 dyrex 系のバイオイメージングによる医療への応用

*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.*, 2020, 15, 1147-1155. [DOI: 10.1002/asia.201901816]

*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.*, 2020, 11, 446. [DOI: 10.1038/s41467-020-14307-y]

* Engineering of electrochromic materials as activatable probes for molecular imaging and photodynamic therapy. L. Wu, Y. Sun, K. Sugimoto, Z. Luo, Y. Ishigaki, K. Pu, T. Suzuki, H.-Y. Chen, D. Ye, *J. Am. Chem. Soc.* 2018, 140, 16340-16352. [DOI: 10.1021/jacs.8b10176]

上記の論文では、近年生物界で第 3 の伝達物質と認知された H2S 濃度を、dyrex 系を用いて非侵襲的にリアルタイムで定量化できるという、画期的な方法論を公表できた。



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計45件（うち査読付論文 45件 / うち国際共著 6件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Wu Luyan, Ishigaki Yusuke, Hu Yuxuan, Sugimoto Keisuke, Zeng Wenhui, Harimoto Takashi, Sun Yidan, He Jian, Suzuki Takanori, Jiang Xiqun, Chen Hong-Yuan, Ye Deju	4. 巻 11
2. 論文標題 H ₂ S-activatable near-infrared afterglow luminescent probes for sensitive molecular imaging in vivo	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 446
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-14307-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Ishigaki Yusuke, Hashimoto Takumi, Sugawara Kazuma, Suzuki Shuichi, Suzuki Takanori	4. 巻 59
2. 論文標題 Switching of Redox Properties Triggered by a Thermal Equilibrium between Closed Shell Folded and Open Shell Twisted Species	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 6581 ~ 6584
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201916089	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ishigaki Yusuke, Hayashi Yuki, Suzuki Takanori	4. 巻 141
2. 論文標題 Photo- and Thermal Interconversion of Multiconfigurational Strained Hydrocarbons Exhibiting Completely Switchable Oxidation to Stable Dicationic Dyes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 18293 ~ 18300
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.9b09646	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Fujii Shintaro, Koike Masato, Nishino Tomoaki, Shoji Yoshiaki, Suzuki Takanori, Fukushima Takanori, Kiguchi Manabu	4. 巻 141
2. 論文標題 Electric-Field-Controllable Conductance Switching of an Overcrowded Ethylene Self-Assembled Monolayer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 18544 ~ 18550
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.9b09233	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuki Hayashi, Yusuke Ishigaki, Jeremy Merad, Takanori Suzuki, Maurice Medebielle	4. 巻 -
2. 論文標題 5-Arylidene-tetronate as a Versatile Electrophore for Pi-Extended Electron Acceptors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-20-S(K)2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ishigaki Yusuke, Harimoto Takashi, Sugimoto Keisuke, Wu Luyan, Zeng Wenhui, Ye Deju, Suzuki Takanori	4. 巻 15
2. 論文標題 Hexaarylbutadiene: A Versatile Scaffold with Tunable Redox Properties towards Organic Near Infrared Electrochromic Material	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry -An Asian Journal	6. 最初と最後の頁 1147 ~ 1155
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/asia.201901816	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Suzuki Takanori, Sugawara Kazuma, Nojo Wataru, Ishigaki Yusuke, Ohkanda Junko	4. 巻 101
2. 論文標題 A Novel Condensed Heterocyclic Quinone with a Dibenzofuranobisthiadiazole Skeleton	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 99 ~ 99
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-19-S(F)7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nojo Wataru, Ishigaki Yusuke, Takeda Takashi, Akutagawa Tomoyuki, Suzuki Takanori	4. 巻 25
2. 論文標題 Selective Formation of a Mixed Valence State from Linearly Bridged Oligo(aromatic diamines): Drastic Structural Change into a Folded Columnar Stack for Half filled Polycations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry- A European Journal	6. 最初と最後の頁 7759 ~ 7765
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201901272	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Kusaka Keiichi, Saito Yuki, Sakamoto Kazuki, Suzuki Takanori	4. 巻 10
2. 論文標題 Chiral diversification through the assembly of achiral phenylacetylene macrocycles with a two-fold bridge	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 4782 ~ 4791
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9SC00972H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Saito Takafumi, Fujiwara Kenshu, Kondo Yoshihiko, Akiba Uichi, Suzuki Takanori	4. 巻 60
2. 論文標題 Synthesis of the cyclohexene segment of portimine	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Tetrahedron Letters	6. 最初と最後の頁 386 ~ 389
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2018.12.063	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wu Luyan, Sun Yidan, Sugimoto Keisuke, Luo Zhiliang, Ishigaki Yusuke, Pu Kanyi, Suzuki Takanori, Chen Hong-Yuan, Ye Deju	4. 巻 140
2. 論文標題 Engineering of Electrochromic Materials as Activatable Probes for Molecular Imaging and Photodynamic Therapy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 16340 ~ 16352
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.8b10176	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kawada Yuiki, Ohmura Shunsuke, Kobayashi Misaki, Nojo Wataru, Kondo Masaki, Matsuda Yuka, Matsuoka Junpei, Inuki Shinsuke, Oishi Shinya, Wang Chao, Saito Tatsuo, Uchiyama Masanobu, Suzuki Takanori, Ohno Hiroaki	4. 巻 9
2. 論文標題 Direct synthesis of aryl-annulated [c]carbazoles by gold(I)-catalysed cascade reaction of azide-diyne and arenes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 8416 ~ 8425
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8SC03525C	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uchimura Yasuto, Shimajiri Takuya, Ishigaki Yusuke, Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 54
2. 論文標題 Expandability of a long C-O bond by a scissor effect in acenaphthofuran	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 10300 ~ 10303
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CC05998E	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nojo Wataru, Tamaoki Hitomi, Ishigaki Yusuke, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu, Fukushima Takanori, Suzuki Takanori	4. 巻 84
2. 論文標題 Molecular Wires with Controllable Delocalization Incorporating Redox Triggered Conjugated Switching Units	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ChemPlusChem	6. 最初と最後の頁 634 ~ 642
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cplu.201800341	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Ishigaki Yusuke, Iwai Tomohiro, Hayashi Yuki, Nagaki Aiichiro, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu, Yoshida Jun-ichi	4. 巻 29
2. 論文標題 Transmission of Point Chirality to Axial Chirality for Strong Circular Dichroism in Triarylmethyl- <i>o,o</i> -dimers	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Synlett	6. 最初と最後の頁 2147 ~ 2154
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1055/s-0037-1610190	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tsunoda Takayuki, Fujiwara Kenshu, Okamoto Satoshi, Kondo Yoshihiko, Akiba Uichi, Ishigaki Yusuke, Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 59
2. 論文標題 Double bond formation based on nitroaldol reaction and radical elimination: A prototype segment connection method for the total synthesis of nigricanoside A dimethyl ester	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Tetrahedron Letters	6. 最初と最後の頁 1846 ~ 1850
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2018.03.091	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Ishigaki Yusuke, Sugawara Kazuma, Umezawa Yu, Katoono Ryo, Shimoyama Atsushi, Manabe Yoshiyuki, Fukase Koichi, Fukushima Takanori	4. 巻 74
2. 論文標題 Narrower HOMO-LUMO gap attained by conformational switching through peripheral polyarylation in 1,4,5,8-tetraaza-9,10-anthraquinodimethanes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Tetrahedron	6. 最初と最後の頁 2239 ~ 2244
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tet.2018.03.041	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Obara Yudai, Fujiwara Kenshu, Suzuki Takanori	4. 巻 9
2. 論文標題 Enhanced circular dichroism at elevated temperatures through complexation-induced transformation of a three-layer cyclophane with dualistic dynamic helicity	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 2222 ~ 2229
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7SC05242A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Kusaka Keiichi, Tanaka Yuki, Fujiwara Kenshu, Suzuki Takanori	4. 巻 16
2. 論文標題 Supramolecular chiroptical switching of helical-sense preferences through the two-way intramolecular transmission of a single chiral source	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Organic & Biomolecular Chemistry	6. 最初と最後の頁 1167 ~ 1171
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7OB03057F	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishigaki Yusuke, Shimajiri Takuya, Takeda Takashi, Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 4
2. 論文標題 Longest C-C Single Bond among Neutral Hydrocarbons with a Bond Length beyond 1.80Å	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chem	6. 最初と最後の頁 795 ~ 806
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chempr.2018.01.011	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Obara Yudai, Kusaka Keiichi, Suzuki Takanori	4. 巻 54
2. 論文標題 Dynamic or undynamic chirality generated by helical arrangement of a shape-persistent ring and rod doubly bridged in a molecule	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 735 ~ 738
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CC09485J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Saito Takafumi, Fujiwara Kenshu, Sano Yusuke, Sato Takuto, Kondo Yoshihiko, Akiba Uichi, Ishigaki Yusuke, Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 59
2. 論文標題 An improved synthesis of the C42-C52 segment of ciguatoxin 3C	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Tetrahedron Letters	6. 最初と最後の頁 1372 ~ 1376
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2018.02.052	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fujiwara Kenshu, Motousu Ryosuke, Sato Daisuke, Kondo Yoshihiko, Akiba Uichi, Suzuki Takanori, Tokiwano Tetsuo	4. 巻 60
2. 論文標題 Total synthesis of kekorins A and B	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Tetrahedron Letters	6. 最初と最後の頁 1299 ~ 1301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2019.04.011	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Sakamoto Kazuki, Suzuki Takanori	4. 巻 55
2. 論文標題 Dual dynamic chirality generated in the assembly of three achiral rods through the three-fold twisting of a macrocycle	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 5503 ~ 5506
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9CC02226K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishigaki Yusuke, Sugawara Kazuma, Yoshida Masaki, Kato Masako, Suzuki Takanori	4. 巻 92
2. 論文標題 Two-Way Chromic Systems Based on Tetraarylanthraquinodimethanes: Electrochromism in Solution and Mechanofluorochromism in a Solid State	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1211 ~ 1217
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20190094	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishigaki Yusuke, Hayashi Yuki, Sugawara Kazuma, Shimajiri Takuya, Nojo Wataru, Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 22
2. 論文標題 9,10-Dihydrophenanthrene with Two Spiro(dibenzocycloheptatriene) Units: A Highly Strained Caged Hydrocarbon Exhibiting Reversible Electrochromic Behavior	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Molecules	6. 最初と最後の頁 1900 ~ 1900
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/molecules22111900	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ohta Eisuke, Uehara Hiromitsu, Han Ying, Wada Kazuhisa, Noguchi Hidenori, Katoono Ryo, Ishigaki Yusuke, Ikeda Hiroshi, Uosaki Kohei, Suzuki Takanori	4. 巻 82
2. 論文標題 Organic Molecular Layer with High Electrochemical Bistability: Synthesis, Structure, and Properties of a Dynamic Redox System with Lipoate Units for Binding to Au(111)	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ChemPlusChem	6. 最初と最後の頁 1043 ~ 1047
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cplu.201600649	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Sato Takuto, Fujiwara Kenshu, Nogoshi Keisuke, Goto Akiyoshi, Domon Daisuke, Kawamura Natsumi, Nomura Yoshitaka, Sato Daisuke, Tanaka Hideki, Murai Akio, Kondo Yoshihiko, Akiba Uichi, Katoono Ryo, Kawai Hidetoshi, Suzuki Takanori	4. 巻 73
2. 論文標題 Synthesis of the ABCDEF-ring of ciguatoxin 3C	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Tetrahedron	6. 最初と最後の頁 703 ~ 726
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tet.2016.12.041	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Kuroda Takuma, Tamaoki Hitomi, Higasa Sho, Nehira Tatsuo, Katoono Ryo, Ishigaki Yusuke, Fujiwara Kenshu, Fukushima Takanori, Yamada Hidetoshi	4. 巻 95
2. 論文標題 Oxidative Desulfurization of Electron-Donating 5,5,7,7-Tetraaryl-5,7-dihydrodibenzo[c,e]thiopyns and the Related Heterocycles: Generation of Dicationic Dyes upon Two-Electron Oxidation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 816 ~ 816
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/com-16-s(s)50	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishigaki Yusuke, Kawai Hidetoshi, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu, Higuchi Hiroki, Kikuchi Hirotugu, Suzuki Takanori	4. 巻 95
2. 論文標題 Bis(diarylethenyl)-thiophenes, -bithiophenes, and -terthiophenes: a new series of electrochromic systems that exhibit a fluorescence response	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Canadian Journal of Chemistry	6. 最初と最後の頁 243 ~ 252
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1139/cjc-2016-0222	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Perez-Sanchez Horacio, P. Ceron-Carrasco Jose, Tamaoki Hitomi, Ishigaki Yusuke, Katoono Ryo, Fukushima Takanori	4. 巻 94
2. 論文標題 Stereoselective Encapsulation for a Triarylmethyl cation o,o-Dimer by Natural α -Cyclodextrin: Origin of Chiral Recognition for the Axially Chiral Dicationic Guest	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 1123 ~ 1123
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-17-13674	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Suzuki Takanori, Nojo Wataru, Sakano Yuto, Katoono Ryo, Ishigaki Yusuke, Ohno Hiroaki, Fujiwara Kenshu	4. 巻 45
2. 論文標題 Redox-induced Conformational Changes in 1,3-Propylene- and m-Xylylenebis[5-(10-butyl-5,10-dihydrobenzo[a]indolo[2,3-c]carbazole)]: Twin-BIC Donors that Form Sandwich-like Dimeric Cations Exhibiting NIR Absorption	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 720 ~ 722
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.160278	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Kawai Shunsuke, Suzuki Takanori	4. 巻 7
2. 論文標題 Dynamic helical cyclophanes with two quadruply-bridged planes arranged in an "obverse and/or reverse" relation	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 3240 ~ 3247
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C5SC04673D	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tamaoki Hitomi, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu, Suzuki Takanori	4. 巻 55
2. 論文標題 Assembly of an Axially Chiral Dynamic Redox System with a Perfluorobiphenyl Skeleton into Dumbbell- or Tripod-type Electron Donors	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 2582 ~ 2586
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201510935	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 52
2. 論文標題 Planar chiral desymmetrization of a two-layered cyclophane and control of dynamic helicity through the arrangement of two nonstereogenic centers	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 1029 ~ 1031
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C5CC09069E	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Sakano Yuto, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu, Suzuki Takanori	4. 巻 51
2. 論文標題 Two-way chromic interconversion of the 2,2'-biphenol-6,6'-diyl dication with 5H,10H-dioxapyrene or 9H,10H-4,5-dihydroxyphenanthrene	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 14303 ~ 14305
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C5CC06338H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Umezawa Yu, Sakano Yuto, Tamaoki Hitomi, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu	4. 巻 44
2. 論文標題 Reversible Interconversion between 11,11,12,12-Tetraaryl-1,4-diaza/-1,4,5,8-tetraazaanthraquinodimethanes and Their Cationic Species: Electrochromic and Halochromic Responses	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 905 ~ 907
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.150251	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uchimura Yasuto, Takeda Takashi, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu, Suzuki Takanori	4. 巻 54
2. 論文標題 New Insights into the Hexaphenylethane Riddle: Formation of an ,o-Dimer	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 4010 ~ 4013
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201500122	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Ishigaki Yusuke, Kawai Hidetoshi, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu	4. 巻 90
2. 論文標題 Bis(diarylethenyl)thiophene, -bithiophene, and -terthiophene: A New Series of Violene-Cyanine Hybrid-Type Electron Donors	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 136 ~ 136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-14-S(K)33	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Ishigaki Yusuke, Yoshida Satoshige, Kawai Hidetoshi, Katoono Ryo, Fujiwara Kenshu, Fukushima Takanori	4. 巻 90
2. 論文標題 Three-Way Output Molecular Response System Based on Tetrakis(3,4-dialkoxyphenyl)-3,4-dihydro[5]helicenes: Perturbation of Properties by Long Alkyl Chains	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 126 ~ 126
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-14-S(K)31	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Takanori, Takeda Takashi, Ohta Eisuke, Wada Kazuhisa, Katoono Ryo, Kawai Hidetoshi, Fujiwara Kenshu	4. 巻 15
2. 論文標題 Bis(10-methylacridinium)s as a Versatile Platform for Redox-Active Functionalized Dyes and Novel Structures	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 The Chemical Record	6. 最初と最後の頁 280 ~ 294
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/tcr.201402073	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fujiwara Kenshu, Hirose Yuta, Saito Takafumi, Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 91
2. 論文標題 Stereoselective Synthesis of the A-Ring of Armatol A from a Bromo-substituted Chiral Building Block Based on Ireland-Claisen Rearrangement and Ring-Closing Olefin Metathesis	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 76 ~ 76
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/com-14-13143	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Kawai Shunsuke, Fujiwara Kenshu, Suzuki Takanori	4. 巻 6
2. 論文標題 Controllability of dynamic double helices: quantitative analysis of the inversion of a screw-sense preference upon complexation	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 6592 ~ 6600
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c5sc02614h	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fujiwara Kenshu, Kushibe Keisuke, Sato Takuto, Norikura Toshio, Matsue Hajime, Iwai Kunihisa, Katoono Ryo, Suzuki Takanori	4. 巻 2015
2. 論文標題 Synthesis of Ganbajunins D and E and the Proposed Structure of Thelephantin D	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 European Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 5798 ~ 5809
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejoc.201500722	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katoono Ryo, Tanaka Yuki, Kusaka Keiichi, Fujiwara Kenshu, Suzuki Takanori	4. 巻 80
2. 論文標題 Dynamic Figure Eight Chirality: Multifarious Inversions of a Helical Preference Induced by Complexation	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 The Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 7613 ~ 7625
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.5b01206	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 鈴木孝紀
2. 発表標題 Organic Electrochromic Systems as Bioprobes of H ₂ S for Imaging and Photodynamic Therapy
3. 学会等名 Strasbourg-Hokkaido Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木孝紀
2. 発表標題 Studies on Dynamic Redox Systems: Construction of Record-breaking Strained Compounds and Development of Unimolecular Memory
3. 学会等名 第99回日本化学会春季年会(受賞講演) (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木孝紀
2. 発表標題 超結合: 共有結合の限界を超えた化学
3. 学会等名 第99回日本化学会春季年会(特別企画) (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takanori Suzuki
2. 発表標題 Dynamic redox system that can form an organic molecular layer : Toward the realization of molecular-based data storage devices
3. 学会等名 17th International Symposium on Novel Aromatic Compounds (ISNA-17) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Takanori Suzuki
2. 発表標題 Toward the realization of molecular-based data storage Devices: An approach from the organic chemistry based on dynamic redox systems
3. 学会等名 The 18th RIES-Hokudai International Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木孝紀
2. 発表標題 単一分子メモリユニットとしての動的酸化還元系：発想とプロトタイプ構築
3. 学会等名 第41回有機電子移動化学討論会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木孝紀
2. 発表標題 有機酸化還元系設計の愉しみ：世界一の構造から単一分子メモリまで
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会特別企画招待講演 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Suzuki
2. 発表標題 Bis(10-methylacridinium)s as a Versatile Platform for Redox Active Functionalized Dyes and Novel Structure
3. 学会等名 2nd International Symposium on π -System Figuration (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 鈴木孝紀
2. 発表標題 ビス(10-メチルアクリジニウム)型色素の化学：多重出力型エレクトロクロミズムから世界記録を持つ特異な構造まで
3. 学会等名 H27年度分子連関相乗系研究部門成果発表会 (招待講演)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 T. Suzuki, Y. Uchimura T. Takeda, R. Katoono, H. Kawai, K. Fujiwara, A. Nagaki, J. Yoshida
2. 発表標題 Bond expandability of the ultralong C-C bond in unsymmetrically substituted tetraarylpyracenes prepared by a flow microreactor method
3. 学会等名 Pacifichem2015 (国際学会)
4. 発表年 2015年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 T. Suzuki, H. Tamaoki, J. Nishida, H. Higuchi, T. Iwai, Y. Ishigaki, K. Hanada, R. Katoono, H. Kawai, K. Fujiwara, T. Fukushima	4. 発行年 2015年
2. 出版社 Organic Redox Systems: Synthesis, Properties and Applications, Chapter 2,	5. 総ページ数 13-37
3. 書名 Redox-Mediated Reversible π -Bond Formation/Cleavage	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	上遠野 亮 (Katoono Ryo) (60432142)	北海道大学・理学研究院・助教 (10101)	
研究分担者	藤原 憲秀 (Fujiwara Kenshu) (20222268)	秋田大学・理工学研究科・教授 (11401)	