

領域略称名：高次複合光応答
領域番号：2606

令和元年度科学研究費助成事業
「新学術領域研究（研究領域提案型）」
に係る事後評価報告書

「高次複合光応答分子システムの開拓と学理の構築」

（領域設定期間）

平成26年度～平成30年度

令和元年6月

領域代表者 （大阪大学・基礎工学研究科・教授・宮坂 博）

目 次

1. 研究領域の目的及び概要	8
2. 研究領域の設定目的の達成度	10
3. 研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況	13
4. 審査結果の所見及び中間評価の所見等で指摘を受けた事項への対応状況	14
5. 主な研究成果（発明及び特許を含む）	16
6. 研究成果の取りまとめ及び公表の状況（主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等）	19
7. 研究組織（公募研究を含む。）と各研究項目の連携状況	24
8. 研究経費の使用状況（設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む）	26
9. 当該学問分野及び関連学問分野への貢献度	30
10. 研究計画に参画した若手研究者の成長の状況	31
11. 総括班評価者による評価	32

研究組織 (総：総括班, 支：国際活動支援班, 計：総括班及び国際活動支援班以外の計画研究, 公：公募研究)

研究項目	課題番号 研究課題名	研究期間	代表者氏名	所属機関 部局 職	構成員数
X00 総	26107001 高次複合光応答分子システムの開拓と学理の構築	平成26年度～平成30年度	宮坂 博	大阪大学・基礎工学研究科・教授	13
Y00 支	15K21725 国際連携による高次複合光応答系の高度化とネットワーク形成	平成27年度～平成30年度	宮坂 博	大阪大学・基礎工学研究科・教授	13
A01 計	26107002 多重光子過程を利用した光反応の高次制御	平成26年度～平成30年度	宮坂 博	大阪大学・基礎工学研究科・教授	3
A01 計	26107003 メソ構造を利用した光化学反応の高次機能制御	平成26年度～平成30年度	井村 考平	早稲田大学・理工学術院・教授	1
A01 計	26107004 理論と実験の協奏的アプローチによる複合スピントリニクス変換制御	平成26年度～平成30年度	重田 育照	筑波大学・計算科学研究センター・教授	4
A01 計	26107005 半導体ナノ微粒子系の多励起子素過程の解明と光応答分子システムへの応用	平成26年度～平成30年度	玉井 尚登	関西学院大学・理工学部・教授	2
A02 計	26107006 界面分子協調システムによる高次光子利用反応系の構築	平成26年度～平成30年度	河合 壯	奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授	5
A02 計	26107007 デザインドイオンマテリアルの光駆動スイッチング	平成26年度～平成30年度	前田 大光	立命館大学・生命科学部・教授	2
A02 計	26107008 分子軌道のトポロジーと分子配列に着目した多機能光応答システム	平成26年度～平成30年度	松田 建児	京都大学・工学研究科・教授	1
A02 計	26107009 分子集積により複合応答機能を発揮するフォトクロミック物質の創製	平成26年度～平成30年度	横山 泰	横浜国立大学・工学研究院・名誉教授	3

A03 計	26107010 高速フォトクロミズム を基盤とする実働分子 マシン開発	平成26年度～ 平成30年度	阿部 二郎	青山学院大学・理工学部・教授	3
A03 計	26107011 有機ナノ結晶の協同的 光反応ダイナミクスと メカニズム	平成26年度～ 平成30年度	朝日 剛	愛媛大学・理工学研究科・教授	2
A03 計	26107012 光応答性超分子複合シ ステムの創生	平成26年度～ 平成30年度	内田 欣吾	龍谷大学・理工学部・教授	4
A03 計	26107013 高次光励起による光応 答性分子結晶のフォト メカニカル新現象の開 拓	平成26年度～ 平成30年度	小島 誠也	大阪市立大学・工学研究科・教授	1
A03 計	26107014 分子集団の協同的光応 答の分子レベル解明お よび動的制御	平成26年度～ 平成30年度	VACHA, Martin	東京工業大学・物質理工学院・教授	2
統括・支援・計画研究 計 15 件					
A01 公	15H01073 制御された金属ナノ構 造による励起子ポラリ トン素過程の追跡と反 応場への応用	平成27年度～ 平成28年度	上野 貢生	北海道大学・電子科学研究所・准教授	1
A01 公	15H01082 量子ドットの禁制遷移 準位での多数励起子生 成による新規光反応の 開発	平成27年度～ 平成28年度	鳥本 司	名古屋大学・工学研究科・教授	1
A01 公	15H01085 基質・励起源局在場を 利用した触媒的多光子 励起光反応の開発	平成27年度～ 平成28年度	磯崎 勝弘	京都大学・化学研究所・助教	1
A01 公	15H01086 高効率シングレットフ ィッション化合物の創 出と励起子分裂の機構 解明	平成27年度～ 平成28年度	久保 孝史	大阪大学・理学研究科・教授	1
A01 公	15H01097 高位電子励起状態の高 精度計算に向けた電子 論の開発と光化学分子 への応用	平成27年度～ 平成28年度	柳井 毅	分子科学研究所・准教授	1

A01 公	15H01099 Efficient Utilization of the Excitation Energy of Highly-excited Quantum Dots for Photoreactions	平成27年度～ 平成28年度	BIJU, Vasudevan P.	北海道大学・電子科学研究所・教授	1
A02 公	15H01076 蛍光性フォトクロミック ナノ粒子における非 線形蛍光スイッチング 現象の理解と応用	平成27年度～ 平成28年度	深港 豪	熊本大学・自然科学研究科・准教授	1
A02 公	15H01077 低分子の光反応と共役 した光応答性高分子シ ステムの開発	平成27年度～ 平成28年度	佐田 和己	北海道大学・理学研究院・教授	2
A02 公	15H01079 マルチメタル正四面体 型ホスト分子のゲスト の対称性を反映した多 段階光応答性	平成27年度～ 平成28年度	山村 正樹	筑波大学・数理物質系・講師	2
A02 公	15H01083 多分子協調場としての フレキシブル光応答分 子の機能集合システム 構築	平成27年度～ 平成28年度	齊藤 尚平	京都大学・理学研究科・准教授	1
A02 公	15H01087 エキシプレックス制御 キラル光化学	平成27年度～ 平成28年度	森 直	大阪大学・工学研究科・准教授	1
A02 公	15H01094 有機無機複合分子協調 による光エネルギー変 換機能の精密制御	平成27年度～ 平成28年度	羽會部 卓	慶應義塾大学・理工学部・准教授	2
A02 公	15H01098 フォトクロミックエレ クトロニクスに向けた 光異性化分子の集積化 と光電変換機能	平成27年度～ 平成28年度	若山 裕	物質・材料研究機構・主席研究員	1
A03 公	15H01078 レーザー誘起相分離過 程に現れる溶液内微小 構造を基礎とした不斉 合成反応場の開拓	平成27年度～ 平成28年度	梶本 真司	東北大学・理学研究科・助教	1
A03 公	15H01081 非平衡分子集合体の電 子励起状態での光応答 協同性発現機構の解明 と電子準位制御	平成27年度～ 平成28年度	伊藤 冬樹	信州大学・学術研究院・准教授	1

A03 公	15H01084 空気界面操作に基づく 光あぶり出しレリーフ 形成機能の創出	平成27年度～ 平成28年度	関 隆広	名古屋大学・工学研究科・教授	3
A03 公	15H01095 二光子で駆動する高分 子光アクチュエーター の開発	平成27年度～ 平成28年度	池田 富樹	中央大学・研究開発機構・教授	3
A03 公	15H01096 フォトクロミズムを用 いた複合応答蛍光スイ ッチング分子システム の創出	平成27年度～ 平成28年度	森本 正和	立教大学・理学部・准教授	1
A03 公	15H01100 プラズモニクチップ による光応答性分子薄 膜界面の局所的構造制 御	平成27年度～ 平成28年度	田和 圭子	関西学院大学・理工学部・教授	1
A01 公	17H05243 One and multiple photon induced generation and stabilization of multi-excitons in quantum dot superlattices	平成29年度～ 平成30年度	BIJU, Vasudevan P.	北海道大学・電子科学研究所・教授	1
A01 公	17H05244 プラズモン共鳴を用い た多光子異性化反応の ナノメータ制御と巨視 的光応答性制御	平成29年度～ 平成30年度	雲林院 宏	北海道大学・電子科学研究所・教授	1
A01 公	17H05245 プラズモン強結合系に おける電子状態の変調 と光反応場への応用	平成29年度～ 平成30年度	上野 貢生	北海道大学・電子科学研究所・准教 授	1
A01 公	17H05252 量子もつれ光とナノ構 造による禁制準位2光 子励起	平成29年度～ 平成30年度	岡 寿樹	新潟大学・自然科学系・准教授	1
A01 公	17H05254 量子ドットの非線形光 応答を用いる新規電気 化学反応系の開拓	平成29年度～ 平成30年度	鳥本 司	名古屋大学・工学研究科・教授	1
A01 公	17H05257 赤外光複合励起による 動作する高効率 UC ナ ノ粒子の創製	平成29年度～ 平成30年度	坂本 雅典	京都大学・化学研究所・准教授	1

A01 公	17H05274 高位電子励起状態の高 精度計算に向けた電子 論の開発とフォトクロ ミック分子への応用	平成29年度～ 平成30年度	柳井 毅	名古屋大学・理学研究科(WPI)・教 授	1
A02 公	17H05250 時空間光変調による分 子協調配向プロセスの 開拓	平成29年度～ 平成30年度	宍戸 厚	東京工業大学・科学技術創成研究 院・教授	1
A02 公	17H05258 多分子協調場としての フレキシブル光応答分 子の機能集合システム 構築	平成29年度～ 平成30年度	齊藤 尚平	京都大学・理学研究科・准教授	1
A02 公	17H05259 振電相互作用密度の概 念による凝集誘起発光 の解明と分子設計	平成29年度～ 平成30年度	佐藤 徹	京都大学・福井謙一記念研究センタ ー・教授	1
A02 公	17H05261 トロイダル相互作用に 基づく高効率フォトン アップコンバージョン	平成29年度～ 平成30年度	森 直	大阪大学・工学研究科・准教授	1
A02 公	17H05269 非線形蛍光消光効率の 超増幅による高感度蛍 光スイッチング分子シ ステムの創出	平成29年度～ 平成30年度	深港 豪	熊本大学・大学院先端科学研究部・ 准教授	1
A02 公	17H05270 有機-無機複合分子協調 による励起子ダイナミ クスの精密制御と機能 発現	平成29年度～ 平成30年度	羽會部 卓	慶應義塾大学・理工学部・准教授	1
A02 公	17H05275 分子協調作用に基づく 光応答固液相転移シス テムの構築	平成29年度～ 平成30年度	則包 恭央	産業技術総合研究所・エレクトロニ クス・製造領域・研究グループ長	1
A03 公	17H05247 可逆な光異性化反応が マクロ構造変化で同期 する自励振動現象の物 理化学解析	平成29年度～ 平成30年度	景山 義之	北海道大学・理学研究院・助教	1
A03 公	17H05248 電荷移動錯体ナノ結晶 における光誘起相転移 挙動の解明	平成29年度～ 平成30年度	小野寺 恒信	東北大学・多元物質科学研究所・助 教	1

A03 公	17H05253 メゾマクロ構造形成 に基づく階層・協同的 蛍光変調分子系の構築	平成29年度～ 平成30年度	伊藤 冬樹	信州大学・学術研究院教育学系・准 教授	1
A03 公	17H05255 分子集合系で駆動する 光合成アンテナ複合体 の超高速エネルギー移 動	平成29年度～ 平成30年度	出羽 毅久	名古屋工業大学・工学研究科・教授	1
A03 公	17H05271 二光子吸収プロセスを 利用した高分子光アク チュエーターの精密駆 動の開拓	平成29年度～ 平成30年度	池田 富樹	中央大学・研究開発機構・機構教授	1
A03 公	17H05272 複合応答蛍光スイッ チング分子システムを用 いた超解像機能イメー ジング	平成29年度～ 平成30年度	森本 正和	立教大学・理学部・教授	1
A03 公	17H05273 プラズモニクチップ によるジアリアルエテ ン結晶化制御	平成29年度～ 平成30年度	田和 圭子	関西学院大学・理工学部・教授	1
公募研究 計 40 件					

1. 研究領域の目的及び概要（2 ページ以内）

研究領域の研究目的及び全体構想について、応募時に記述した内容を簡潔に記述してください。どのような点が「我が国の学術水準の向上・強化につながる研究領域」であるか、研究の学術的背景（応募研究領域の着想に至った経緯、応募時までの研究成果を進展させる場合にはその内容等）を中心に記述してください。

1. 我が国の学術水準の向上・強化につながる新たな研究領域としての特徴

電子励起状態分子はエネルギーや物質変換、光機能発現等において重要な役割を果たしている。これら励起分子の諸過程を対象とする光化学関連研究分野において、日本の研究者は国際的にも先導的役割を果たし、励起分子素過程、光物質合成、光機能分子、光触媒、太陽電池、光物質プロセッシングなど、広範な分野の発展に多大な貢献を行ってきた。

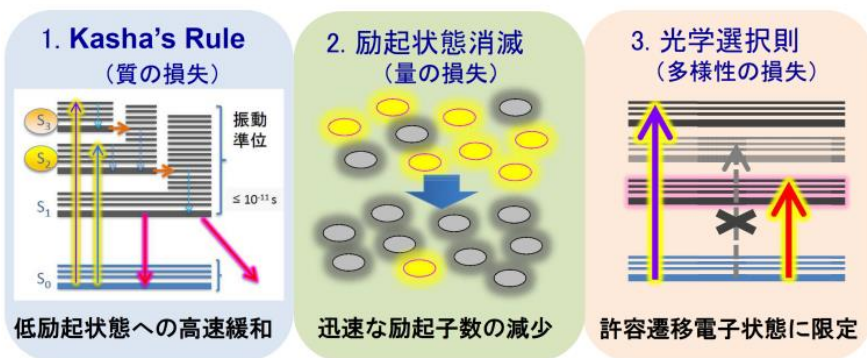
しかし光機能発現やエネルギー・物質変換に応用が想定される比較的大きな分子では、

- ① 高位電子状態が生成しても迅速に最低励起状態に緩和し(Kasha 則)
- ② 集合体系において多くの励起分子が生成しても分子間の迅速な消滅過程(励起子 annihilation)により最終的にはごく少数の励起分子しか残らない など、光子の質や量の損失に関わる大きな制限が存在する。更に、
- ③ 通常の光吸収で到達できる電子状態は主に 1 光子許容なものに限られており、分子が本来有する多様な電子励起状態を有効に利用することも困難であった(下図)。

これらの光利用に対する制限は、我が国が国際的な優位性を保持しつつ、新規光機能物質系の開発を継続するためにも、また、喫緊の課題とされる光物質変換・光エネルギー利用の革新的発展のためにも超克すべき重要な基礎的課題であるが、今まではこれらの制約の超克は非常に困難と考えられてきた。しかし近年、本提案領域の代表者や参画者の研究を含め、多光子吸収や多重励起を利用した高位・禁制電子状態における選択的・特異的光反応、高位電子励起状態からの複数励起子の生成、局所場等の利用による摂動を超えた新奇電子状態作成、複数光子によって誘起される多重スイッチ過程や集合体系における多数励起分子の協同的・階層的な光力学応答など、これら3種の制限を超える新現象が報告されだしていた。

これらの背景を基に、分子系の電子励起状態利用に関わる上記の3種の制限を超克する手法として、多重・多光子励起、電子状態変調、集合体設計等の方法を用い、従来の“1光子吸収と1分子応答”を超える“複合励起と応答(英語では PhotoSynergetics と表記した)”の学理構築と応用を行い、光子有効利用を可能とする「実働光駆動アクチュエーター分子系」、「多段階光物性スイッチング」、「閾値光応答」、「annihilation free 系」などの新規複合励起応答分子系の構築を目指すことにより、短期的な光化学分野における国際的優位性の継続のみならず、中長期的にも今後の解決すべき分子系の光利用関連諸課題の共通基盤となる学理の構築を目標として研究提案を申請し、採択いただいた。

分子系の光利用に対する共通の制限



2. 研究の学術的背景

励起分子の反応や諸過程に深く関連する励起移動、光誘起電子移動・陽子移動、無輻射過程、蛍光の溶媒効果などの基本過程の多くは 1950 年代までに見出され、この数十年間の実験装置、理論的取り扱い手法、計算機の進歩等による詳細な機構解明、支配因子の抽出、理論的定式化を通して基礎原理が確立されてきた。これらの知見は、指導原理として高効率エネルギー捕集・光誘起電子移動系の構築や新規光機能分子系の開拓等に大きく寄与したが、一方、上述の Kasha 則(1950 年)や、励起分子間消滅などの光エネルギー(光量子、光子数)利用に対する大きな制限に対しては、積極的にこれらを解決するようなアプローチはほとんど存在しなかった。

しかし、先述のように、今までは単なる光量子の損失と考えられてきた高位電子励起状態から、高効率光反応スイッチング機能が発現することや、高量子収率光化学系が構築できることが最近示されている。また励起子消滅により大きなエネルギー損失が生じていた固体系でも、多くの光子を用いた集合体の協同メカニカル応答、さらに光強度に閾値を持つ分子集団系の指向的形態変化なども報告されており、①や②の制限を超える分子系の光応答が可

能となりつつある。また通常は多光子過程などを利用しなければアクセスが困難な1光子禁制電子励起状態も、局在電場下においては定常光でも生成可能であることや、摂動をはるかに超える電子状態変調なども実現されており、上記の③の制限を克服する手法も見出され始めているとともに、比較的強度の大きなレーザー光でのみ誘起可能な現象も、局在電場の利用等により弱光強度でも実現可能となりつつあった。

3. 研究期間内に明らかとする事項

以上の背景に基づき、本新学術領域では、**複数光子、局所場、分子集合体の設計・利用により、分子・分子集合体の新規光応答を可能とする励起手法を複合励起**とし、① 複合励起のための重要な手法である多重励起、多光子励起、多重光子生成・変換、局所電場による電子状態変調を対象に、理論・実験的アプローチにより、局所場設計、生成する電子励起状態の特性評価、反応性の解明を行い複合励起の制御法を開拓・確立すること、また、**多くの光子の吸収や多数の励起分子により駆動される高度化された応答を複合(光)応答と定義し**、② 界面や多数の分子が協調することによって発現する複合応答を用い、「100%を大きく超える量子収率を持つ光化学系」など多光子多段階物性制御システムなど複合化されたスイッチング機能を持つ多重光機能発現分子・分子集合系の構築、更に、これらの複合光応答系を通じて、③ 比較的大きなサイズ(数100nmから数 μm 以上)で複合光応答を示すメゾ、マクロ系への展開の基盤となる学理の探究、メゾスコピック複合光応答系の機能開拓と機構解明を行うとともに、「光強度に閾値を持つ集合体応答」、「分子集団の協同的光応答の動的制御」などの応用発展を具体的な研究課題とした。また、これらの複合励起・応答に立脚する新規電子励起状態分子科学の学問体系の構築、更に具体的な研究結果から得られた知見に基づき、今後の光利用関連諸課題に対応できる共通基盤の構築を目標とし、研究組織 A01 班(複合励起に基づく高位電子励起状態へのアプローチ・機構解明)、A02 班(多重分子協調による高次複合光応答分子システムの構築)、A03 班(メゾ・マクロスコピック複合光応答分子集合系の機能開拓)を設置し、研究を展開した(右図)。



4. 共同研究や研究人材の育成の方針

本研究提案では、柔軟な共同研究を推進する観点を重視して研究組織を構成することとした。既に進行している共同研究の進展のみならず、各計画・公募研究の責任ある進捗に伴い、さらに発展的な共同研究体制の構築を目標にした。共同研究の組織的な推進のために、**計画班や公募班の間の自発的な提案に加え、総括班がイニシアチブを持って積極的に共同研究の提案を行うこと**、また、研究期間中には各研究グループの若手主催のワークショップも開催し、それぞれの研究ステージにおける問題点や解決法などについて徹底的な議論を通じた提案を促し、研究の進捗、研究人材育成にも配慮した。またセミナーや共同研究提案に対しては、積極的に総括班から援助を行った。また幅広い研究分野からの参加者が多いことも考慮し、分野間の情報交換も密に行い、特に**若手研究者に対しては研究期間のみならず中長期的にも高度光子利用に対する幅広い視座を持つ研究者に成長できるように配慮した**。また、平成27(2015)年に開設した国際支援活動班も有効に活用し、国際共同研究による研究の加速、グローバル若手研究者育成の強化を図った。

5. 本領域の発展が学術水準の向上・強化につながる点

本領域で提案する複合励起を用いた分子・分子集団系の新規光応答の開拓と応用は、従来の化学・光化学領域では、ほとんど顧みられなかった高位・禁制励起状態、変調電子状態、多重励起子状態等を積極的に利用することを目指した。これらの研究結果は、分子系の光利用における前述の3種の制限の克服、光子有効利用に対するパラダイムシフトを可能とし、短期的な光化学分野における国際的優位性の継続のみならず、本研究で得られる学理を応用することにより、中長期的にも多くの我が国の研究者の分子系の光利用関連諸課題への有効な対応、光エネルギー・物質変換等の人類共通の課題解決に対しても先導的な役割を継続可能とする。さらに国際活動支援班を活用し、信頼関係を持つ国際共同研究ネットワークを構築することで、日本初の新しい科学・技術を学問の世界的潮流へと成長させる努力を行い、この点からも中長期的に日本のプレゼンスの維持・向上を可能とするよう務めた。

2. 研究領域の設定目的の達成度（3 ページ以内）

研究期間内に何をどこまで明らかにしようとし、どの程度達成できたか、また、応募時に研究領域として設定した研究の対象に照らしての達成度合いについて、具体的に記述してください。必要に応じ、公募研究を含めた研究項目ごとの状況も記述してください。

本新学術領域では、複合励起・複合光応答（PhotoSynergetics）に立脚する新規学術領域の確立、更に具体的な研究結果から得られた知見に基づき、今後の光利用関連諸課題に対応できる共通基盤の構築を目標とし、研究組織 A01、A02、A03 班を設置し、採択時の審査結果の所見及び中間評価の指摘（本報告書 項目 4、ページ 14）に対応するとともに、領域内また国際共同研究を含めて研究を展開した。以下に設定目的の達成度を示す。

A01 班：特異電子状態へのアプローチ

高位電子励起状態の反応機構解明と新規反応開拓、局所場による電子状態変調と特異電子状態へのアクセス手法の開発、多重励起子状態の制御応用と励起子融合と分裂等を用いた新規光応答の開拓を目的とし、時間分解測定、理論化学、物質化学を中心とした計画班・公募班が、A02、A03 との共同研究を含めて、研究を展開した。

高位電子励起状態からの反応機構解明・開拓：宮坂グループ (G) は、ジアリールエテンやフルギド誘導体などの 6π 電子系分子を対象に、逐次 2 光子吸収により生成する高位電子励起状態からの高効率開環反応の機構解明を目的とした。2 つのフェムト秒励起パルス間の時間間隔および波長可変の高精度反応ダイナミクス測定システムによる測定の結果、開環反応に重要な役割を示す電子状態および Franck-Condon 核配置などを明らかにし、軌道対称性や分子の過渡構造の観点から機構を解明した (図 2-1)。またこの結果に基づき、核波束に同期させた逐次 2 光子反応を誘起させ、この機構の妥当性を確認した。さらに半導体量子ドットの高励起状態からの選択的電子移動反応、可視逐次 2 光子吸収により生成した高位電子励起状態からの選択的電荷分離反応とラジカル解離などを見出し、高位励起状態からの新たな反応開拓を行った。玉井 G では半導体ナノ粒子を対象に、高位励起状態からの超高速ホット電子移動系を構築した。柳井 G は大分子系の高位電子励起状態の計算手法を開発し、実験結果と対応させることにより、その有効性を検証し、凝縮系分子の高位励起状態の理論化学による詳細な研究を可能とした。

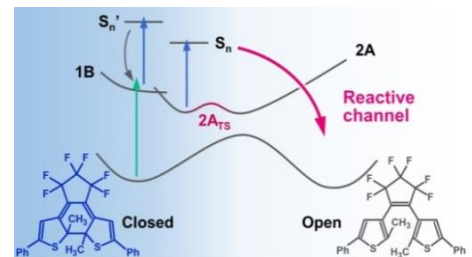


図 2-1. 逐次 2 光子開環反応の機構。

局所場による電子状態変調：井村 G では、貴金属ナノ構造近傍の増強電場による分子系の電子状態変調を対象に、メソ光増強場の種々の可視化法を開発・応用し、二次元プラズモンの空間構造と光励起状態の長寿命化、さらにメソ構造体の近接場光選択則を確立した (図 2-2)。上野 G では、励起子-プラズモン強結合による電子状態変調を目的として、振動モード強結合による無輻射失活速度定数の変調を実証するとともに光反応制御やプラズモン状態の制御も可能とした。増尾 G (玉井 G 分担者) は、半導体量子ドット周辺の空間の増強場を精密に制御することによって励起子消滅を回避可能であることを実験的に示し、多重励起子の制御を行った。

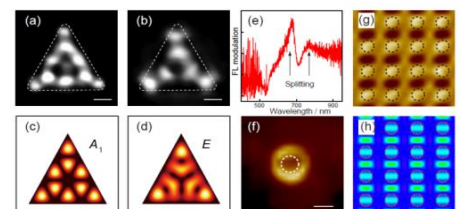


図 2-2. メソ光増強場の可視化法の開発と応用。

多重励起子の利用：励起子分裂 (Singlet Fission: SF) や三重項消滅 (TTA) に基づくアップコンバージョン (UC) は分子レベルの光応答を増幅しメゾスコピック複合光応答システムにつながるための重要な素過程である。重田 G は理論と実験の協奏により研究を展開し、詳細な機構解明のみならず高効率 UC 結晶性固体を実現した。Biju G は高発光性量子ドットにおける多励起子過程を対象に研究を行い、多励起子による発光 blinking の抑制機構を解明し、多励起子の有効利用を可能とした。坂本 G は UC を利用し赤外光により駆動する高効率水素生成光ナノ粒子触媒を開発するとともに、ナノ粒子の局在化プラズモン共鳴励起による熱ホルの移動機構を初めて明らかにし、高量子収率と超長寿命電荷分離状態を有する物質を作成した。

以上のように、実験・理論のアプローチにより、高位励起状態の反応機構解明と新規反応開拓、局所場による電子状態変調と特異電子状態へのアクセス手法の開発、多重励起子状態の制御応用と励起子融合と分裂等を用いた新規光応答の開拓の目的に沿った研究成果が多数得られており、当初の目標が着実に達成された。

A02 班：多分子協調場と手法の開拓

A01 班の複合励起による分子レベルの応答を A03 班におけるメゾスコピックサイズの集合体複合応答へと「つなぐ仕組み」に対応する多分子協調による加算・増幅的複合応答系の開拓を目的に、材料化学、合成化

学、物理化学、理論化学などを中心とする計画班・公募班が、A01 や A03 との積極的な共同研究を含め、増幅反応ネットワークと多機能光応答分子集合体の設計・開発を中心に研究を展開した。

増幅光応答系の開拓： 河合 G では、光のみならず酸化により異性化反応を行うターアリーレン誘導体を見出し、連鎖酸化異性化反応により実効的な収率として 100000 % の反応増幅ネットワークを構築し、光誘起電子移動をトリガーとした場合 3000% 以上の光反応量子収率が得られることを実証した。さらに、連鎖反応を誘起する光反応系として最高感度（反応量子収率 71%）の光酸発生剤の開発、光塩基発生剤への展開、また光ルイス酸発生剤の開発も行い、1000% を超える実効反応量子収率で、典型的なルイス酸触媒反応例の向山・アルドール反応の光駆動に成功した。これらの結果、多様な光反応への増幅光応答の展開が可能となった。深港 G では蛍光性ユニットと光応答ユニットを連結した複合光応答分子の自己集積により蛍光性ナノ粒子を作製し、光異性化反応により生成した構成分子のわずか数% の異性体が、効率的な励起エネルギー受容体として作用することで、ナノ粒子全体の蛍光を完全に ON→OFF スイッチングできることを示し、発光制御における“1 光子-1 分子応答”から“少数光子-多分子応答”への増幅光応答系を構築した。また羽曾部 G では、金ナノクラスターとペンタセンやテトラセンの分子集合体に対して巧みな表面修飾を行うことで、光子量論反応（三重項量子収率~200%）の一重項分裂系を作成し損失フリーの励起子増幅を達成した。また佐藤 G では凝集分子系における励起状態の損失抑制に関する理論構築を行い、内部転換にともなう励起状態緩和抑制をもたらす因子として複数の分子の高対称性偽オリゴマー形成に起因する電子状態の擬縮退の重要性を示し、増幅応答系構築に必要な集合体設計指針を示した。

集合化に伴う多機能光応答分子集合体の設計・開発： 斎藤 G は基底状態では非平面構造を持つ 8π 電子系シクロオクタテトラエン型分子が励起状態では平面構造へと大きな構造変化を行うことを見出し、分子レベルの構造変化に基づく光誘起融解性集合体を構築し、光照射により剥離可能な接着集合体として機能することを示した(図 2-3)。さらに基底状態構造の変形を利用したメカノフォア機能発現など多重光機能を開拓した。則包 G ではアゾベンゼンモノマーを含む共重合高分子を対象に、光異性化反応の進行に伴うガラス転移温度の上下を利用し、微弱光で変形駆動する高感度光メカニカル応答を実現した。松田 G ではジアリールエテンを骨格とする両親媒性光応答分子を合成し、下部臨界完溶挙動と組み合わせ、光によるマクロな可逆形態制御を実現した。さらに光異性化分子の固液界面自己組織化における多重光機能の解明に取り組み、液中 STM による分子像観察にもとづく表面被覆率の濃度依存性から光異性化反応による光自己組織化の配列形成メカニズムを解明するとともに、非線形光応答性を示す自己組織構造形成へと発展させた。前田 G では、アゾベンゼンをアニオンユニットとしてイオン結晶中に導入することで光異性化に伴う可逆的な結晶-結晶相転移に成功した(図 2-4)。横山 G では、タンパク質をテンプレートとすることでアキラルなジアリールエテンの光異性化反応の完全キラル制御を実現しキラリティーの光増幅手法を示した。またこれらの集合系の多機能光応答に必要な構成分子の配向制御手法として、宍戸 G では光照射の位置や強度変化により簡便かつ高精度に大面積の分子配向パターンを形成できる光重合手法を開発し、光メカニカル挙動の制御に応用した。

以上のように、分子協調による加算・増幅的複合応答系の構築に関わる増幅反応ネットワーク、多機能光応答分子集合体の構築が行われると共に、新規光機能に繋がる集合体の多様な複合応答も多数実証されており、当初の研究目的を十分に達成することができた。

A03 班：高次光応答分子システムの構築

分子集合系に特徴的な協奏的またコヒーレントな複合励起過程を利用することで、リアルワールドで光駆動可能な多光子応答系や光強度に閾値を持つ分子・分子集合系など 1 光子 1 分子光反応では実現できない高度な複合光応答システムの創出を目的とした。材料化学、有機化学、光計測などを専門とする計画班・公募班が、A01 や A02 との積極的な共同研究を含め、光駆動集合応答系の構築と機構解明、これらの複合光応答集合体系の構築に必用な新規分子材料開発、固体系光ダイナミクス計測法開発の点から研究を展開した。

光駆動する集合応答系の機構解明と機能開拓： 小島 G はジアリールエテン誘導体単結晶の光誘起結晶形状変化を対象に研究を展開し、定常光照射によって通常の光誘起屈曲の後、屈曲が加速する特異的二段階光屈曲挙動を見いだすと同時に、動的挙動と結晶格子の詳細な解析を行い、分子反応から巨視的応答を導く階層的機構を解明した。これらの知見に基づき、光の照射方向に依存して屈曲、円筒状螺旋およびねじれ挙動を示す結晶の開発に成功し、光による結晶形態の精密運動制御を可能とした。内田 G はジアリールエテン誘導

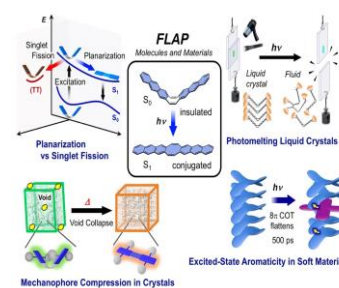


図 2-3. シクロオクタテトラエン型分子の多重光機能.

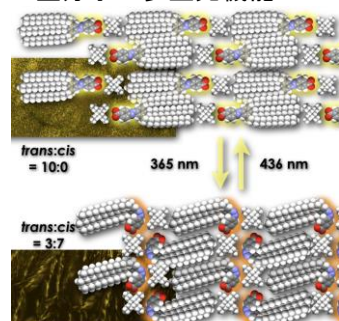


図 2-4. 光異性化誘起相転移結晶の作動原理.

体の結晶成長の光制御によって、ハスの葉の表面と同様のダブルラフネス構造を形成し、可逆的光制御可能な超親水性結晶膜を実現した。さらにフォトサリエント（光による粉砕）現象を示す光応答性中空結晶を見出し、照射により内包物の放出が可能なメゾスコピック系を構築した。池田 G はアゾトラン誘導体を有する架橋液晶高分子を用い、2光子吸収による多様な形態変化の精密制御を実現した。景山 G はアゾベンゼン誘導体を用いた混合共結晶を用い、連続光照射下で周期的な自発励振系の作製に成功した。森本 G と阿部 G ではフォトクロミック分子を内包するサブミクロンからミクロンサイズの高分子ビーズを対象に、レーザートラッピング下においてフォトクロミック反応に伴う μm から $10\mu\text{m}$ 程度のビーズの可逆的並進移動を実証し、分子レベルの反応をメゾスコピック系の応答に展開する新手法開発に貢献した。

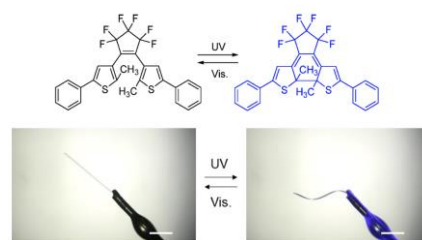


図 2-6. 結晶形態の精密運動光制御

光強度に閾値を持つ応答系の開発： 朝日 G は固体系における新たな光強度閾値系の開拓を目的に研究を展開し、ナノ秒パルスレーザーによる光熱効果を用いた非線形光異性化応答を実現した。阿部 G は 1 分子内に配置した複数の光反応部位間に強い電子的相互作用が働くバイフォトクロミック系に着目し、光子密度が低い連続光でも 2 光子フォトクロミック反応が効率的に進行する分子系を開発した。また種々の置換基や基本構造を変化させ、照射光強度に依存して多様なフォトクロミック応答を実現し、消色-着色の 2 値応答系から多値光応答への応用を可能とした。

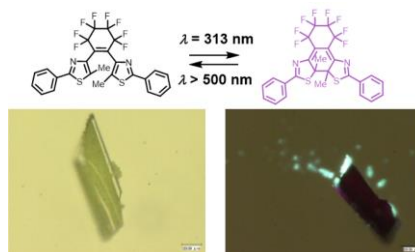


図 2-7. フォトサリエント現象

新規光応答分子材料の開発と応用： 阿部 G は可視光照射により安定な着色状態から過渡的な無色状態を生成する高速逆フォトクロミック分子を開発した。逆フォトクロミック分子は、可視光で駆動でき、反応の進行に伴い無色になることから、物質深部にまでフォトクロミック反応を誘起できるという特徴を持つ。さらに、紫外光のみに応答する正フォトクロミック分子と可視光に応答する逆フォトクロミック分子を組み合わせることで波長選択光励起へと展開した。森本 G は可視単一波長で蛍光 OFF→ON, ON→OFF、蛍光励起の 3 作用を制御可能な蛍光スイッチング分子を開発し可視レーザー 1 波長による超解像蛍光 ON-OFF イメージング法へと発展させ、固体系の高空間分解かつ長時間ダイナミクス測定を可能とした。

固体系光ダイナミクスの計測法開発： Vacha G は固体系における単一分子レベルの外場効果や超解像イメージング測定システムを作成し、三重項消滅 (TTA) に基づくアップコンバージョン蛍光を点光源として利用することで、多結晶中の三重項励起子の拡散過程を光の回折限界よりも小さな領域で可視化することに成功した。朝日 G は固体単一ナノ粒子の光反応ダイナミクスの測定を可能とするフェムト秒ポンプ-プローブ共焦点光散乱分光装置を開発し、励起子消滅過程の詳細な検出を可能とした。その結果、励起子消滅の抑制機構の発見などに寄与した。これらの測定法開発は、固体系における光応答に関わる詳細な学理構築に必要な詳細な知見の獲得にも大きく貢献した。

以上のように、複合光応答系の機能開拓と機構解明による学理の解明、新規複合応答を可能とする光強度に閾値を持つ分子系の開発、学理解明に必要な測定手法の開発など、当初の研究目的を着実に達成できた。

A01、A02、A03 それぞれの項に示したように、測定手法や計算手法の開発と応用、新分子・新分子集合体の開発とその光応答の評価、新規光応答系の実験・理論による機構解明などの研究がなされ、965 本の論文（うち 98 本が領域内共同研究、182 本が国際共著）や 433 件の国際学会の基調・招待講演などとして発表されるとともに、Springer 社から“Photosynthetic responses in molecules and molecular aggregates”と題する書籍（500 ページ）の発刊が決定している（2019 年度末）。これらの成果および研究から得られた学理の観点からも、本新学術領域の研究項目に関わる初期設定目的は達成されたと判断できる。

総括班はこれらの研究の推進にあたり共同研究提案や実施支援を行うと共に（詳細、p. 24）、若手育成についても積極的に活動を行い、多数の受賞に示されるように（詳細、p. 31）多くの若手の成長があった。また国際活動支援班は多数の国際共同研究の支援のみならず、フランスとの間では CNRS プログラムとして「日仏光化学共同研究所」を設置し中長期的国際共同研究体制を構築した（p. 24）。これらの共同研究推進や若手育成、国際研究拠点形成の点においてもその目標が達成され、今後の研究の展開を担う若手人材を含め“新たな学術領域”が構築できたと考えられる。

発展の著しい分子開発技術と超短時間領域や極微小空間への展開など最新の光制御技術を融合的に駆使することで、分子や分子集団の機能を引き出す本新学術領域の研究戦略の有効性は明らかと考えられ、本新学術領域で開発された手法、物質群、またその機構解明に基づく学理を基に、多極的な共同研究ネットワークのもとでエネルギー、情報、物質の高次変換や生命現象を含む自然現象の真理探究に向けた光子利用の“新たな学術領域”の展開が期待される。

3. 研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況（1 ページ以内）

研究推進時に問題が生じた場合には、その問題点とそれを解決するために講じた対応策等について具体的に記述してください。また、組織変更を行った場合は、変更による効果についても記述してください。

- 分担者や協力者の転出：
研究期間全体において、各計画班内の分担者、協力者の転出などが10件程度あったが、転出先における研究環境の立ち上げが迅速に行われたこと、また、総括班経費などにより効率的に研究を継続できたため、特に大きな問題にはならなかった。
- 採択時の審査結果の所見への対応：
採択時の審査結果の所見として「対象となる分子の新規性がやや欠ける」とのご意見に対しては、領域の開始にあたり、計画班の中で新分子開発の技術を有する研究グループには、特に新規分子開発を含めた研究展開にも留意していただいた。また第1期公募（2015-2016）では、新規分子系・分子集団系の構築と光応答の研究を展開する研究者に多数参画（全19件の中で13件）していただいた。その結果、中間評価では“審査結果の所見において指摘された「対象とする分子系の不足」に対しては、公募研究において試料調製系の研究者を多く採択することで対応しており、領域全体として、企画・調整が円滑に行われているものと判断できる”、との評価をいただいた。また第2期公募（2017-2018）においても、新分子開発・集合体作製に関わる13件のグループに（全21件中）参加いただき、新規物質の開発を継続発展するとともに、集合体としての光応答性への応用の観点も含めて研究を継続発展させた。（本報告書 項目4. 14 ページに詳細を示した。）
- 中間評価のコメントへの対応：
コメントとしていただいた、① 本領域の趣旨との関連が不明確な研究、② 進捗の思わしくない課題、③ 実験と理論研究者の共同による「学理の構築」への期待 については、それぞれ総括班から、研究領域の趣旨の徹底、共同研究の助言などを行うことで対応した。その結果、最終年度までには当初目的に沿った十分な成果が得られた。（本報告書 項目4. 14 ページに詳細を示した。）
- 組織変更について：
2017-2018年の公募班の研究代表者1名が、計画班として申請していた新たな新学術領域の採択に伴い、2018年度途中で本新学術領域から抜けることとなったが、この公募班代表者の2018の途中までの研究進捗は順調でありその研究目的がほぼ達成されていたことから、特に大きな問題とはならなかった。このケースを除き、期間全体を通して組織変更は行っていない。

4. 審査結果の所見及び中間評価の所見等で指摘を受けた事項への対応状況（2 ページ以内）

審査結果の所見及び中間評価において指摘を受けた事項があった場合には、当該コメント及びそれへの対応策等を記述してください。

<審査結果の所見において指摘を受けた事項への対応状況>

採択時における審査結果の所見は、以下の通りであった。

“本研究領域は、エネルギー・物質変換、光機能発現等において重要な役割を果たす電子励起分子とそのシステムに関する提案である。光科学研究分野にて問題となる励起状態の寿命が短くすぐに緩和すること、励起しても一部の励起分子しか残らないこと、一光子許容状態に制限があることなど、光量子・光エネルギーの利用における厳しい制約の克服を目指した意欲的な提案である。また、克服すべき制約を超越する手段として、多量・多光子励起、電子状態変調、集合体設計等の方法を用い、従来の一光子吸収と一分子応答を越える「複合励起と応答」の学理構築と応用を目指している。本研究領域は、光技術の発展に資するものであり、科学技術イノベーションへの貢献も期待され、新学術領域研究としても相応しい。領域代表者は、レーザー光科学の分野で世界的に著名で実績があり、マネジメントの問題はない。一方で、対象となる分子の新規性がやや欠けるとの指摘があるが、より高度な励起状態の活用の実現性が高いとも予想され、真の高次複合応答に対する学理の構築を期待したい”

提案書に書かれた内容には、比較的によく知られたフォトクロミック分子による例示が多かったため“対象となる分子の新規性がやや欠けるとの指摘がある”とのご意見を受けたと考えている。化学としてより優れた新物質を創成することは最も肝要な視点の1つであり、領域の開始にあたりこの点には特に配慮し、計画班の中で新分子開発の技術を有する研究グループには、特に新規分子合成を含めた研究展開にも留意していただいた。

その結果、たとえば阿部グループ（A03 計画班）では、フェノキシルーイミダゾリルラジカル複合体（PIC）を新たに開発した。これらの分子系は異なる種類のラジカル同士が分子内結合した共通の構造を持ち、ラジカル複合体としてもほとんど報告例のない新規化合物であるとともに、高速かつ高効率に光解離を示す初めての例である。さらに、種々の置換基を導入することによって、ラジカルの再結合時間を数十ナノ秒から数秒の広い時間範囲で制御できることを示しており、複合光応答系の構築に用いるための光反応性分子の幅を大きく広げることができた。また前田グループ（A02 計画班）では、新規分子集合系の構築と共に新規発光分子の開発も行い、発光特性と分子集団系の集合状態に関する共同研究を展開した。また第1期公募（2015-2016）では、久保、磯崎（A01）、深港、齊藤、佐田、山村、森、羽曾部（A02）、関、池田、森本（A03）など、有機・無機分子の合成技術を用いて新規分子系・分子集団系の構築と光応答の研究を展開する研究者に多数参画していただいた。また同じく公募班として参画した鳥本、Biju（A01）は半導体や金属微粒子などの光応答性ナノ物質作製を行いつつ研究を展開する研究者であり、公募班19グループの中で物質開発の技術を有するグループは13件と約70%に及ぶ。これらの結果、扱う物質・分子系の種類は格段に広がり、領域の目的とする新規光応答に関する研究を加速することができた。また、すでによく知られた分子であっても領域の目標に沿って十分に機能を発揮できる性能の向上した分子系や、新規物性を示す誘導体分子系の開発も行いつつ研究を展開した。

これらの結果、平成28（2016）年の中間評価では、

“審査結果の所見において指摘された「対象とする分子系の不足」に対しては、公募研究において試料調製系の研究者を多く採択することで対応しており、領域全体として、企画・調整が円滑に行われているものと判断できる”、との評価をいただいた。

また第2期公募（2017-2018）においても、新分子開発・集合体作製に関わるグループとして13件（全21件中）に参加いただき、新規物質の開発を継続発展するとともに、集合体としての光応答性への応用の観点も含めて研究を継続発展させた。

<中間評価の所見等で指摘を受けた事項への対応状況>

中間評価では以下のような評価結果と所見があった。

評価結果： A（研究領域の設定目的に照らして、期待どおりの進展が認められる）

所見：本研究領域の目的達成に向けて、多重・多光子励起、電子状態変調、集合体設計などの手法を用いた「多光子・多分子光応答」系の開拓に取り組んでいる。計画研究は全体として順調に進展しており、特に、精密な分子設計によって、従来の光科学の限界を超えるような「複合励起」を実現する分子系の開発に成功していることは高く評価できる。また、公募研究においても、新規分子系、分子集団系の構築と光応答の研究を活発に推進しており、先駆的な結果が得られている。研究領域内の連携に関しては、総括班による積極的な奨励や本研究領域の研究組織の研究者専用のホームページを利用した情報共有などを通じて、相補的な共同研究という面においては既に十分な進展が認められる。今後、相乗的な連携効果につながる共同研究への展開に期待したい。また、若手研究者の育成についても、総括班によって様々な視点から十分に配慮された運営がなされており、若手研究者の学協会等の論文賞やポスター賞、学協会賞等の受賞などにつながっている。審査結果の所見において指摘された「対象とする分子系の不足」に対しては、公募研究において試料調製系の研究者を多く採択することで対応しており、領域全体として、企画・調整が円滑に行われているものと判断できる。

一方で、一部の研究課題について、本研究領域の趣旨との関連が不明確なものや進捗が思わしくないものが見受けられることから、適切な議論や連携研究の強化に基づく軌道修正、研究の加速が望まれる。また、今後、実験系研究者と理論系研究者との共同研究の更なる進展により、多光子・多分子光応答系の「開拓」に留まらない、高次複合光応答分子システムの「学理の構築」に向けた展開を期待したい。

全体としては高い評価をいただいたが、一部の研究課題に対して、① 本領域の趣旨との関連が不明確なもの、② 進捗の思わしくないものご指摘をいただくと共に、③ 実験と理論研究者の共同による「学理の構築」への助言があった。

最初の指摘 ① については、毎回の領域会議において全研究グループに対して、領域の趣旨を繰り返し説明してきたところではあるが、さらに留意して説明を行った。さらに、領域代表および各班の班長から該当すると考えられるグループに直接的に趣旨の徹底を促すと共に、領域の趣旨に沿った具体的展開に対するアドバイスを行った。その結果、これらの該当のグループでは効率的な励起子分裂分子系への展開や、新規光応答を示す光反応性分子性結晶の開発などが行われ、領域の趣旨に沿った優れた成果を得ることができた。

研究の進捗 ② に該当すると考えられるグループは、中間評価時点では若干の遅れはあったが、基本的には当初の計画に沿った成果が得られていた。具体的な共同研究の提案などを行い研究の進捗を加速するようにした。その結果、可逆光誘起相転移分子集合体を始めとする新規な分子集合体が作製され、最終年度までには当初目的に沿った十分な成果が得られた。

実験と理論の共同研究 ③ については、計画研究の研究代表者、分担者の理論研究者に加えて、後半の2年には公募班として3名の理論研究者（1名は前半にも参加）に参画いただき、実験系の研究者との共同研究を積極的に推進させた。その結果、実験結果に対する理論研究者と実験研究者との間で多くの議論が行われ、学理の構築につながる共同研究へと繋がった。

特に、新規光応答性分子の開発、その広波長域の時間分解測定による反応挙動の解明と高位電子励起状態のエネルギー準位の決定、理論化学による計算結果と実験値との対応の検証といった3グループからなる共同研究の結果、大分子系の高位電子励起状態に対する有効な計算手法の開発と応用がなされた。この結果は、高位励起状態の電子状態や反応性の理論予測を可能とするものであり、上記のような“新分子開発→複合励起による新規物性発現→理論的解明と新計算手法の開発”の形の共同研究のみならず、“より精度を高めた計算手法の開発→理論予測→実験による新規光応答の実証”のような理論予測に基づく展開を可能とするもので、今後の「複合光応答」の研究発展に対して大きな意義を持つ成果と考えられる。

5. 主な研究成果（発明及び特許を含む）〔研究項目ごとに計画研究・公募研究の順に整理する〕

（3 ページ以内）

本研究課題（公募研究を含む）により得られた研究成果（発明及び特許を含む）について、新しいものから順に発表年次をさかのぼり、図表などを用いて研究項目ごとに計画研究・公募研究の順に整理し、具体的に記述してください。なお、領域内の共同研究等による研究成果についてはその旨を記述してください。記述に当たっては、本研究課題により得られたものに厳に限ることとします。

A01 班 計画研究： A01 班では「複合励起に基づく高位電子励起状態へのアプローチ・機構解明」を主な課題として、高位電子励起状態の反応機構解明・開拓、局所場による電子状態変調・多重励起子状態の制御と応用、特異電子状態へのアプローチ、複合励起手法の開拓の観点から研究を行った。宮坂グループ(G)では、高位励起状態における反応機構解明のために、フェムト秒 2 パルスによる反応ダイナミクスの高精度測定システムを構築し、これをジアリールエテンやフルギド誘導体など 6π 電子系の逐次2光子による高位励起状態からの高効率開環反応機構の解明に用いた。その結果、1光子励起直後の 1B 状態から光吸収により生成した高位励起状態からは開環反応が進行しないが、2A 状態から生成した高位励起状態からは高収率で開環反応が進行すること、また 2A 状態における構造緩和後にもう1光子吸収した場合には、より高収率に開環反応が進行することを明らかにした(図 5-1)。これらの結果から、高位電子状態の開環反応も基本的には電子波動関数の対称性に基づき進行すること、また非常に短い($\ll 1\text{ps}$)高位励起状態寿命間には大きな構造変化が起こらないため、2光子目の吸収の始状態の核配置が反応に大きな役割を果たすことを示した(JPCC 2018 Suppl. Cover, JACS 2017, A03 小島 G, A02 横山 G との共同研究)。また逐次2光子励起を光イオン化の機構解明に応用し、低エネルギーで進行する溶液中の光イオン化では、サブピコ秒程度の寿命を持つ特異電子状態から電子放出がおこることを明らかにした(PCCP 2019 Back Cover)。また A03 阿部 G との共同研究により半導体量子ドットの多励起状態からの選択的電子移動反応(JPCL 2018 Suppl. Cover)、可視逐次2光子吸収で生成した高位励起状態からの選択的電荷分離反応を経由したラジカル解離(JACS 2017)など、2光子誘起電子移動系を開拓した。さらにメゾスコピック系の複合光応答にも研究を展開し、レーザートラッピングされた μm サイズの粒子を対象に、内包された分子のフォトクロミック反応を誘起させ数百 nm から数 μm の粒子の可逆的並進運動を実現し、分子レベルの光反応をメゾスコピック応答へと繋ぐ新手法を開発した(JPCC 2018 Editor's Choice, Front Cover, JPCL 2018, 図 5-2, A03 阿部 G, 森本 G との共同研究)。

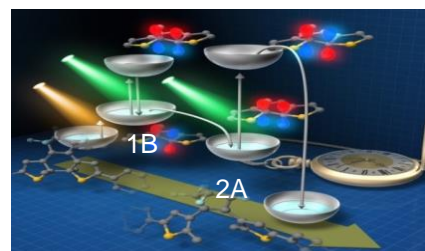


図 5-1. 二光子開環反応機構の概念図。

励起子分裂(Singlet Fission: SF)や三重項消滅(TTA)に基づくアップコンバージョン(UC)は分子レベルの光応答を増幅しメゾスコピック複合光応答システムにつながるための重要な素過程である。重田 G は理論と実験の協奏により研究を展開し、詳細な機構解明のみならず(JPCC 2018, JPCL 2018)、高効率 UC 結晶性固体を実現した(Mater. Horiz. 2017, A03 Vacha G との共同研究、図 5-3)。井村 G ではメゾ構造に誘起される局所光電場を用いて物質の電子状態を変調し光化学反応の高次制御の実現を目標に、メゾ光増強場の種々の可視化法を開発・応用し(JPCL 2019 Suppl. Cover, JPCL 2018)、二次元プラズモンの空間構造と光励起状態の長寿命化、さらにメゾ構造体の近接場光選択則を確立した。

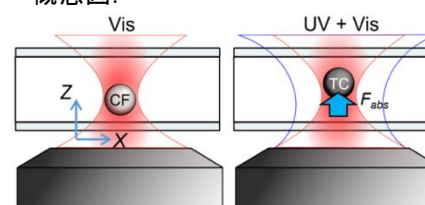


図 5-2. フォトクロミック反応によるレーザー捕捉粒子の可逆並進運動。

半導体量子ドット(QD)は新規光物性を示す機能性材料の観点からも重要な物質である。玉井 G では半導体 QD における高位励起状態からの反応開拓を目的に研究を行い、高位励起状態からの超高速ホット電子移動を行う QD 系を構築した(JPCC 2016)。

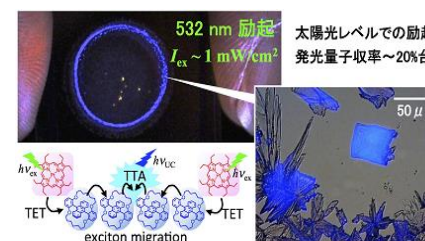


図 5-3. 高効率 UC 固体系の構築。

A01 班 公募研究： Biju G は高発光性 QD における多励起子による発光 blinking の抑制機構を明らかにし、多励起子の有効利用法を開発した(ACIE 2019, Hot Article, Cover Page)。柳井 G は大分子系の高位電子励起状態の計算手法を開発し(J. Chem. Theory Comput. 2017 Editors' choice)、実験結果と対応させることによりその有効性を検証した(JACS 2017, A03 阿部 G, A01 宮坂 G との共同研究)。この結果、理論化学による凝縮系の大分子の高位励起状態の詳細な先導的研究が可能となった。坂本 G はアップコンバージョンを利用し赤外光により駆動する高効率水素生成光ナノ粒子触媒を開発するとともに(JACS 2019, Suppl. Cover, A01 玉井 G との共同研究)、ナノ粒子の局在化プラズモン共鳴励起による熱ホルルの移動プロセスを初めて明らかにし、プラズモン誘起熱キャリア移動の機構の中でも高い量子収率と、

圧倒的に長い電荷分離状態(従来の 10 万倍)を有する材料を開発した(*Nat. Com.* 2018)。上野 G は、励起子-プラズモン強結合による電子状態変調を目的として、振動モード強結合による無輻射失活速度定数の変調を実証するとともに(*Nat. Nanotechnol.* 2018) 光反応制御やプラズモン状態の制御も可能とした(*Nat. Com.* 2018)。

A02 班 計画研究: A02 班では「多重分子協調による高次複合光応答分子システムの構築」を課題として、多数分子が協調する複合反応ネットワークや反応場の構築に関する研究を展開した。

河合 G では、1 光子による 1 分子応答の制限を大きく超克する分子反応システムの開発のために、連鎖反応を誘起する光反応系として光酸発生剤の大幅な感度向上に取り組み、最高感度(反応量子収率 71%)の分子系を開発(*Chem. Com.* 2017, *JACS* 2015, *JACS Spot Light*, A03 阿部 G との共同研究)するとともに、光塩基発生剤の開発へも研究を展開した(*JOC* 2018)。さらにターアラーレン誘導体が光のみならず酸化剤によっても開環すること、またその反応が図 5-4(右)に示す連鎖酸化異性化機構で進むことを見出し、分子の最適化を行うことによって連鎖反応効率を 100000%まで高めた。この結果に基づき光誘起電子移動反応を用いた場合、3000%以上の光反応量子収率が達成できること、高感度放射線検出への展開も可能であることを示した(*Chem. Eur. J.* 2016, *Inside Cover*, 図 5-4 左)。

前田 G と松田 G は複合反応場の観点から研究を行った。前田 G では、 π 電子系イオンからなる集合体の光駆動による形態・物性のスイッチングに取り組み、アゾベンゼンカルボキシレートからなるラメラ状集合体においてトランス-シス異性化に起因した可逆的な結晶-結晶転移の発現を見出した。この過程で多様な π 電子系イオンペア集合体の創製を実現し、結晶・液晶などにおける規則配列構造の構築と制御に成功した(*Chem. Eur. J.*, 2016 & 2017)。松田 G は液中 STM による分子像観察にもとづき、2 次元自己組織化の精密光制御により顕著な光応答非線形性を示す自己組織構造形成を実現した(*ACIE* 2017, 図 5-5)。また下限臨界溶温度(LCST)を持つ光応答分子を用いて、光によるマクロな可逆形態制御を実現した(*JACS* 2015)。横山 G では、生体分子と光異性化分子との複合系において 99%ee 以上の高エナンチオ選択的光異性化に成功した(*Chem.Com.* 2017)。またフォトクロミズムによる酸発生を利用することで、フォトクロミック特性のオンオフを光のみによって制御する光-光制御系にも研究を展開した(*Org. Lett.* 2016)。

A02 班 公募研究: 宍戸 G では照射位置の変化や光強度に空間的な傾斜を形成させることで、大面積に簡便に分子配向を一段階形成可能な光重合系を開発し、その高精細化を達成した(*Sci.Adv.* 2017)。斎藤 G では、励起状態において大きな構造変化を示す 8π 電子系シクロオクタテトラエン型分子の励起状態挙動を解明すると共に(*J. Mater. Chem. C*, 2017, A01 宮坂 G との共同研究)、アントラセンの光 2 量化を組み合わせた光融解性液晶接着剤の開発、基底状態構造の強制的平面化によるメカノフォア機能の発現など、多分子の協同的応答による新規光応答系を実現した(*Nat. Com.* 2016)。

佐藤 G では特異的な挙動でありながら機構の理解が深まっていなかった凝集誘起発光増強 AIEE の理論的解明に取り組み、AIEE が励起電子状態の擬縮退に起因する内部転換の抑制によることを明らかにした(*Sci.Rep.*, 2017)。森 G では、ヘキサアールベンゼン骨格にジフェニルアントラセンユニットを導入した新規分子で多励起子間の相互作用を増強するトロイダル相互作用による三重項アップコンバージョンの増強効果を見出した(*JPCA*, 2018)。深港 G では次世代の超解像イメージングに要求される非線形蛍光スイッチング分子材料の開発に取り組み、分子構造とその凝集構造をも精密に制御することで、わずか数%の光反応で系中の蛍光を完全に ON-OFF スwitching できる超高効率な非線形蛍光スイッチングに成功した(*ACIE* 2016, *Cover Picture*)。羽曾部 G は有機分子の多励起子生成反応である一重項分裂とそのエネルギー変換過程の高効率化を目標にアセン系分子の二量体から有機・無機複合材料の合成と光物性評価に取り組んだ。特に顕著な成果としてペンタセンおよびテトラセン二量体における量論的な一重項分裂の反応進行(三重項量子収率 $\sim 200\%$)とその長寿命化を実現した。さらにクロラニルを電子受容体として利用することで、約 170%の電子移動量子収率を達成した(*ACIE* 2019, *ACS Energy Lett.* 2019, 図 5-6)。則包 G では光応答固液相転移を示す重合性アゾベンゼンモノマーを利用した共重合高分子においてガラス転移温度

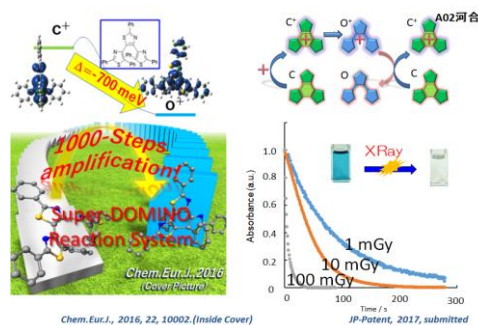


図 5-4. 超増幅性を有するフォトクロミック分子の異性化反応と放射線センシング

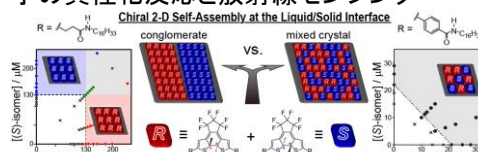


図 5-5. 二次元自己組織化における協働的光応答系

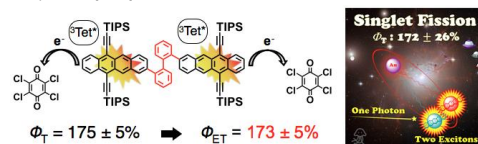


図 5-6. 高効率一重項分裂電荷分離系

の光制御効果を見出し、紫外光と可視光で駆動する光メカニカル応答や光粘着性応答を実現した (*Nat. Com.* 2018)。

A03 班 計画研究： A03 班では、「メゾマクロスコピック複合光応答分子集合系の機能開拓」を課題として、入力光強度に閾値を有する非線形光応答分子の開発、集合体におけるユニット間の協同的光応答の動的制御、メゾスコピック複合光応答系の開拓とその機構解明を中心に研究を展開した。

阿部 G では、入力光強度に閾値を有する非線形光応答の開拓を目的に、フェノキシラジカルとイミダゾリラジカルを基盤とする新規高速フォトクロミック複合体 (PIC) を開発し (*JACS* 2015, 図 5-7)、分子系の複合化を行うことにより照射光強度に依存する着色状態の色調変化に成功し、着脱色の 2 値応答から多値応答系へと発展させた (*JACS* 2018, *Suppl. Cover*)。また、二つの PIC がそれぞれベンゼン環のパラ位に結合した bisPIC は、1 光子反応では短寿命の着色体を、一方 2 光子反応では長寿命の着色体をそれぞれ生成することを示し (*JACS* 2017)、光強度に依存する分子系の新規設計指針を示した。

朝日 G と Vacha G はナノスケールの結晶や分子集合体における分子間の協同効果が顕著に発現する複合光応答について研究を行なった。朝日 G では水中に分散した粒径 50 nm の C₆₀ ナノ結晶では、フェムト秒パルスレーザーで励起すると隣接した分子間で電荷移動 (CT) 励起状態 (C₆₀⁺-C₆₀⁻) を生成し、サブピコ秒の時定数で電荷再結合により S₁ 状態に緩和することを見いだした。また、強励起条件では隣接する CT 励起状態間で CT 励起状態錯体を生成することにより、励起子消滅が抑制されていることを明らかにし (*PCCP* 2018, 図 5-8, A01 宮坂 G との共同研究)、集合体における多励起子利用につながる結果を示した。また Vacha G では、エネルギー供与体と三重項増感剤を少量添加したエネルギー受容体の多結晶を用いて、三重項消滅 (TTA) に基づくアップコンバージョン蛍光を点光源として利用することで、多結晶中の三重項励起子の拡散過程を光の回折限界よりも小さな領域で可視化することに成功し (*Nanoscale* 2017)、集合体系の励起子移動に関わる高空間分解計測を可能とした。

集合化されたフォトクロミック分子系では、協同的な分子レベルの光応答が結晶変形などのマクロスコピックな光応答を引き起こす。内田 G と小島 G は、新たなフォトメカニカル現象の開拓を目的に、ジアリールエテン誘導体結晶を用いた研究を展開した。内田 G では、光による結晶成長を利用して、ハスの葉のダブルラフネス構造を模した表面を作成し、可逆的な光制御超撥水性表面を創製した (*JACS* 2016)。さらに、フォトサリエント (光粉砕) 現象を示す中空結晶を見だし、直径 1 ミクロンのビーズを内包させた結晶に紫外光照射することで、その内包物の放出が可能なメゾスコピック系を構築した (*ACIE* 2017, *Hot Paper*, A03 森本 G との共同研究)。小島 G はナノメートルサイズの空孔にジアリールエテンを結晶化させることによりナノファイバー結晶を形成し、ナノ結晶でもバルク結晶と同様な光屈曲挙動が起きることを見いだした (*Nanoscale* 2018)。さらに、これらの階層的機構を解明し、屈曲、円筒状螺旋、およびねじれ挙動などの新たな応答を実現し、光による結晶形態の精密運動制御を可能とした。 (*JACS* 2018, *Front Cover*, 図 5-9)。

A03 班 公募研究： 森本 G は超解像蛍光顕微鏡用の蛍光プローブの開発を目的として、turn-on 型蛍光スイッチングを示すジアリールエテンを開発した。新しく開発したジアリールエテン誘導体では、開環体の 0-0 バンドよりも長波長域に存在するホットバンドを可視光励起することにより閉環反応が誘起され、蛍光性閉環体の生成が見いだされた (*JACS* 2017, A01 宮坂 G との共同研究)。この蛍光性閉環体は同じ可視光照射により無蛍光性の開環体に戻ることから、光異性化反応に伴う蛍光の ON-OFF、OFF-ON、および蛍光励起の 3 過程を可視単一波長レーザー光で担う超解像蛍光イメージングが可能となった (*Chem. Com.* 2017, *Back Cover*, A01 宮坂 G との共同研究)。景山 G はアゾベンゼン誘導体とオレイン酸の混合共結晶が、連続的な青色光照射下で周期的かつ一定の振幅の屈曲性運動で特徴付けられる自励振動を示すことを発見した (*ACIE* 2016)。

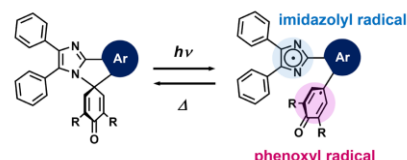


図 5-7. PIC のフォトクロミズム

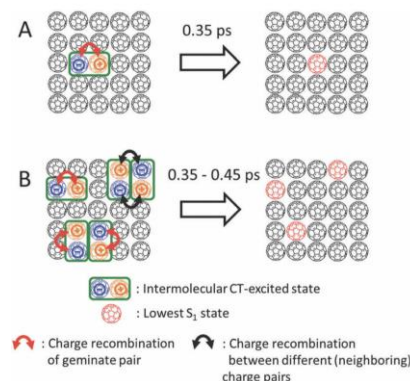


図 5-8. C₆₀ ナノ結晶の光応答. (A) 弱励起, (B) 強励起条件

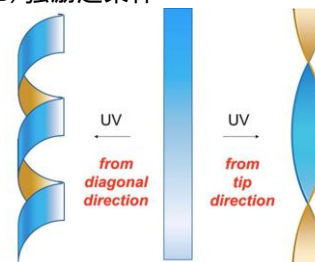


図 5-9. ジアリールエテンの新しい結晶光変形

6. 研究成果の取りまとめ及び公表の状況（主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等）（5ページ以内）

本研究課題（公募研究を含む）により得られた研究成果の公表の状況（主な論文、書籍、ホームページ、主催シンポジウム等の状況）について具体的に記述してください。記述に当たっては、本研究課題により得られたものに厳に限ることとします。

- 論文の場合、新しいものから順に発表年次をさかのぼり、研究項目ごとに計画研究・公募研究の順に記載し、研究代表者には二重下線、研究分担者には一重下線、連携研究者には点線の下線を付し、corresponding author には左に*印を付してください。
- 別添の「(2) 発表論文」の融合研究論文として整理した論文については、冒頭に◎を付してください。
- 補助条件に定められたとおり、本研究課題に係り交付を受けて行った研究の成果であることを表示したもの（論文等の場合は謝辞に課題番号を含め記載したもの）について記載したもののについては、冒頭に▲を付してください（前項と重複する場合は、「◎▲・・・」と記載してください）。
- 一般向けのアウトリーチ活動を行った場合はその内容についても記述してください。

<発表論文> 総数 965 報、うち国際共著 182 報、領域内共著 98 報（うち 3 グループ共著 13 報、4 グループ共著 2 報）

研究項目 A01 複合励起に基づく高位電子励起状態へのアプローチ・機構解明

A01 計画研究

- ▲1. T. Matsuura, K. Imaeda, S. Hasegawa, H. Suzuki, *K. Imura, "Characterization of Overlapped Plasmon Modes in Gold Hexagonal Plate Revealed by Three-Dimensional Near-Field Optical Microscopy", *J. Phys. Chem. Lett.* **2019**, *10*, 819-824. 査読有
- ◎▲2. T. Uno, M. Koga, H. Sotome, *H. Miyasaka, N. Tamai, *Y. Kobayashi, "Stepwise Two-Photon-Induced Electron Transfer from Higher Excited States of Noncovalently Bound Porphyrin-CdS/ZnS Core/Shell Nanocrystals", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 7098-7104. 査読有
- ◎▲3. *S. Ito, M. Mitsuishi, K. Setoura, M. Tamura, T. Iida, M. Morimoto, M. Irie, *H. Miyasaka, "Mesoscopic Motion of Optically Trapped Particle Synchronized with Photochromic Reactions of Diarylethene Derivatives", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 2659-2664. 査読有
- ▲4. K. Imaeda, S. Hasegawa, *K. Imura, "Static and Dynamic Near-Field Measurements of High-Order Plasmon Modes Induced in a Gold Triangular Nanoplate", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 4075-4081. 査読有
- ◎▲5. *R. Sato, H. Kitoh-Nishioka, K. Kamada, T. Mizokuro, K. Kobayashi, *Y. Shigeta, "Synergetic Effects of Triplet-Triplet Annihilation and Directional Triplet Exciton Migration in Organic Crystals for Photon Upconversion", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 6638-6643. 査読有
- ◎▲6. N. Suzuki, K. Suda, *D. Yokogawa, H. Kitoh-Nishioka, S. Irie, A. Ando, L. M. G. Abegão, *K. Kamada, A. Fukazawa, *S. Yamaguchi, "Near Infrared Two-Photon-Excited and -Emissive Dyes Based on a Strapped Excited-State Intramolecular Proton-Transfer (ESIPT) Scaffold", *Chem. Sci.* **2018**, *9*, 2666-2673. 査読有
- ◎▲7. H. Sotome, T. Nagasaka, K. Une, S. Morikawa, T. Katayama, S. Kobatake, *M. Irie, *H. Miyasaka, "Cycloreversion Reaction of a Diarylethene Derivative at Higher Excited States Attained by Two-Color Two-Photon Femtosecond Pulsed Excitation", *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 17159-17167. 査読有
- ◎▲8. H. Sotome, T. Nagasaka, K. Une, C. Okui, Y. Ishibashi, K. Kamada, S. Kobatake, *M. Irie, *H. Miyasaka, "Efficient Cycloreversion Reaction of a Diarylethene Derivative in Higher Excited States Attained by Off-Resonant Simultaneous Two-Photon Absorption", *J. Phys. Chem. Lett.* **2017**, *8*, 3272-3276. 査読有
- ◎▲9. Y. Arai, *S. Ito, H. Fujita, Y. Yoneda, T. Kaji, S. Takei, R. Kashihara, M. Morimoto, *M. Irie, *H. Miyasaka, "One-Colour Control of Activation, Excitation and Deactivation of a Fluorescent Diarylethene Derivative in Super-Resolution Microscopy", *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 4066-4069. 査読有
- ▲10. L. Wang, T. Sagaguchi, T. Okuhata, M. Tsuboi, *N. Tamai, "Electron and Phonon Dynamics in Hexagonal Pd Nanosheets and Ag/Pd/Ag Sandwich Nanoplates", *ACS Nano* **2017**, *11*, 1180-1188. 査読有
- ◎▲11. Y. Yoneda, T. Katayama, *Y. Nagasawa, H. Miyasaka, Y. Umena, "Dynamics of Excitation Energy Transfer between the Subunits of Photosystem II Dimer", *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 11599-11605. 査読有
- ◎▲12. H. Takata, H. Naiki, L. Wang, H. Fujiwara, K. Sasaki, N. Tamai, *S. Masuo, "Detailed Observation of Multiphoton Emission Enhancement from a Single Colloidal Quantum Dot Using a Silver-Coated AFM Tip", *Nano Lett.* **2016**, *16*, 5770-5778. 査読有
- ◎▲13. T. Uchida, T. Yoshikawa, M. Tamura, *T. Iida, *K. Imura, "Multiple Resonances Induced by Plasmonic Coupling between Gold Nanoparticle Trimers and Hexagonal Assembly of Gold-Coated Polystyrene Microspheres", *J. Phys. Chem. Lett.* **2016**, *7*, 3652-3658. 査読有
- ◎▲14. Y. Yoneda, T. Noji, T. Katayama, N. Mizutani, D. Komori, M. Nango, H. Miyasaka, S. Itoh, *Y. Nagasawa, *T. Dewa, "Extension of Light-Harvesting Ability of Photosynthetic Light-Harvesting Complex 2 (LH2) through Ultrafast Energy Transfer from Covalently Attached Artificial Chromophores", *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, *137*, 13121-13129. 査読有
- ◎▲15. *S. Ito, Y. Taga, K. Hiratsuka, S. Takei, D. Kitagawa, S. Kobatake, *H. Miyasaka, "Restricted Diffusion of Guest Molecules in Polymer Thin Films on Solid Substrates as Revealed by Three-Dimensional Single-Molecule Tracking", *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 13756-13759. 査読有
- ▲16. Y. Nishiyama, K. Imura, *H. Okamoto, "Observation of Plasmon Wave Packet Motions via Femtosecond Time-Resolved Near-Field Imaging Techniques", *Nano Lett.* **2015**, *15*, 7657-7665. 査読有 **他 173 報**

A01 公募研究

- ▲1. L. Chouhan, S. Ghimire, *V. Biju, "Blinking Beats Bleaching: The Control of Superoxide Generation by Photo-ionized Perovskite Nanocrystals", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, *58*, 4875-4879. 査読有
- ◎▲2. S. Ghimire, *V. C. Nair, C. Muthu, K. Yuyama, M. Vacha, *V. Biju, "Photoinduced Photoluminescence Enhancement in Self-assembled Clusters of Formamidinium Lead Bromide Perovskite Nanocrystals", *Nanoscale* **2019**, on the web (doi: 10.1039/c8nr10082a). 査読有
- ◎▲3. Z. Lian, *M. Sakamoto, J. J. M. Vequizo, C. S. K. Ranasinghe, A. Yamakata, T. Nagai, K. Kimoto, Y. Kobayashi, N. Tamai, *T. Teranishi, "Plasmonic p-n Junction for Infrared Light to Chemical Energy Conversion", *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 2446-2450. 査読有

- ◎▲4. *M. Sakamoto, T. Kawawaki, M. Kimura, J. J. M. Vequizo, H. Mitsunaga, C. S. Ranasinghe, A. Yamakata, H. Matsuzaki, A. Furube, *T. Teranishi, "Clear and Transparent Nanocrystals for Infrared-Responsive Carrier Transfer", *Nat. Commun.* **2019**, *10*, 406. 査読有
- ◎▲5. *K. Yuyama, M. J. Islam, K. Takahashi, T. Nakamura, *V. Biju, "Crystallization of Methylammonium Lead Halide Perovskites by Optical Trapping", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2018**, *57*, 13424-13428. 査読有
- ◎▲6. E. M. Thomas, S. Ghimire, R. Kohara, A. N. Anil, K. Yuyama, Y. Takano, K. G. Thomas, *V. Biju, "Blinking Suppression in Highly Excited CdSe/ZnS Quantum Dots by Electron Transfer under Large Positive Gibbs (Free) Energy Change", *ACS Nano* **2018**, *12*, 9060-9069. 査読有
- ◎▲7. S. Ghimire, A. Sivasdas, K. Yuyama, Y. Takano, *R. Francis, *V. Biju, "Quantum Dot-Polymer Conjugates for Stable Luminescent Displays", *Nanoscale* **2018**, *10*, 13368-13374. 査読有
- ◎▲8. *P. Walke, S. Toyouchi, M. Wolf, W. Peeters, S. Prabhu, T. Inose, S. De Feyter, *Y. Fujita, *H. Uji-i, "Facilitating Tip-Enhanced Raman Scattering on Dielectric Substrates via Electrical Cutting of Silver Nanowire Probes", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 7117-7122. 査読有
- ◎▲9. P. Walke, Y. Fujita, W. Peeters, S. Toyouchi, W. Frederickx, S. De Feyter, *H. Uji-i, "Silver Nanowires for Highly Reproducible Cantilever Based AFM-TERS Microscopy: Towards a Universal TERS Probe", *Nanoscale*, **2018**, *10*, 7556-7565. 査読有
- ◎▲10. J. Yang, Q. Sun, K. Ueno, X. Shi, T. Oshikiri, *H. Misawa, *Q. Gong, "Manipulation of the Dephasing Time by Strong Coupling between Localized and Propagating Surface Plasmon Modes", *Nat. Commun.* **2018**, *9*, 4858. 査読有
- ◎▲11. T. Kameyama, M. Kishi, C. Miyamae, D. K. Sharma, S. Hirata, T. Yamamoto, T. Uematsu, M. Vacha, S. Kuwabata, T. Torimoto, "Wavelength-Tunable Band-Edge Photoluminescence of Nonstoichiometric Ag-In-S Nanoparticles via Ga³⁺ Doping", *ACS Applied Mater. Interfaces* **2018**, *10*, 42844-42855. 査読有
- ◎▲12. Z. Lian, *M. Sakamoto, H. Matsunaga, J. J. M. Vequizo, A. Yamakata, M. Haruta, H. Kurata, W. Ota, T. Sato, *T. Teranishi, "Near Infrared Light Induced Plasmonic Hot Hole Transfer at a Nano-Heterointerface" *Nat. Commun.* **2018**, *9*, 2314. 査読有
- ◎▲13. D. Eguchi, *M. Sakamoto, *T. Teranishi, "Ligand Effect on the Catalytic Activity of Gold Clusters in the Electrochemical Hydrogen Evolution Reaction", *Chem. Sci.* **2018**, *9*, 261-265. 査読有
- ◎▲14. Z. Lian, *M. Sakamoto, Y. Kobayashi, N. Tamai, J. Ma, T. Sakurai, S. Seki, T. Nakagawa, M. Lai, M. Haruta, H. Kurata, *T. Teranishi, "Durian-shaped CdS@ZnSe Core@Mesoporous-shell Nanoparticles for Efficient and Sustainable Photocatalytic Hydrogen Evolution", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 2212-2217. 査読有
- ▲15. *V. C. Nair, C. Muthu, A. L. Rogach, R. Kohara, *V. Biju, "Channeling Exciton Migration into Electron Transfer in Formamidinium Lead Bromide Perovskite Nanocrystal/Fullerene Composites", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, *56*, 1214-1218. 査読有
- ◎▲16. *B. Fortuni, *T. Inose, S. Uezono, S. Toyouchi, K. Umemoto, S. Sekine, Y. Fujita, M. Ricci, G. Lu, A. Masuhara, J. A. Hutchison, L. Latterini, H. Uji-i, "In-Situ Synthesis of Au-Shelled Ag Nanoparticles on PDMS for Flexible, Long-Life, and Broad Spectrum-Sensitive SERS Substrates", *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 11298-11301. 査読有
- ◎▲17. *Y. Fujita, R. Aubert, P. Walke, H. Yuan, B. Kenens, T. Inose, B. Fortuni, M. Chamtour, K. Jansen, S. De Feyter, M. B. J. Roelofs, *H. Uji-i, "Highly Controllable Direct Femtosecond Laser Writing of Gold Nanostructures on Titanium Dioxide Surfaces", *Nanoscale* **2017**, *9*, 13025-13033. 査読有
- ▲18. J. Li, K. Ueno, H. Uehara, J. Guo, T. Oshikiri, *H. Misawa, "Dual Strong Couplings between TPPS J-Aggregates and Aluminum Plasmonic States", *J. Phys. Chem. Lett.* **2016**, *7*, 2786-2791. 査読有
- ▲19. H. Yu, Q. Sun, K. Ueno, T. Oshikiri, A. Kubo, Y. Matsuo, *H. Misawa, "Exploring Coupled Plasmonic Nanostructures in the Near Field by Photoemission Electron Microscopy", *ACS Nano* **2016**, *10*, 10373-10381. 査読有
- ▲20. K. Uchida, S. Ito, *M. Nakano, *M. Abe, *T. Kubo, "Biphenalenylidene: Isolation and Characterization of the Reactive Intermediate on the Decomposition Pathway of Phenalenyl Radical", *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 2399-2410. 査読有
- ▲21. K. Uchida, Z. Mou, *M. Kertesz, *T. Kubo, "Fluxional σ -Bonds of the 2,5,8-Trimethylphenalenyl Dimer: Direct Observation of the Sixfold σ -Bond Shift via a π -Dimer", *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 4665-4672. 査読有
- ◎▲22. M. Okamura, M. Kondo, R. Kuga, Y. Kurashige, T. Yanai, S. Hayami, V. K. K. Praneeth, M. Yoshida, K. Yoneda, S. Kawata, *S. Masaoka, "A Pentanuclear Iron Catalyst Designed for Water Oxidation", *Nature* **2016**, *530*, 465-468. 査読有 **他103報**

研究項目 A02 多重分子協調による高次複合光応答分子システムの構築

A02 計画研究

- ◎▲1. M. Louis, R. Sathy, J. Kumar, S. Katao, R. Guillot, T. Nakashima, *C. Allain, *T. Kawai, *R. Métivier, "Mechano-Responsive Circularly Polarized Luminescence of Organic Solid-State Chiral Emitters", *Chem. Sci.* **2019**, *10*, 843-847. 査読有
- ◎▲2. R. Yamakado, H. Ishibashi, Y. Motoyoshi, N. Yasuda, *H. Maeda, "Ion-Pairing Assemblies Based on π -Extended Dipyrrolylquinoxalines" *Chem. Commun.* **2019**, *55*, 326-329. 査読有
- ◎▲3. R. Sathy, *R. Métivier, A. Brosseau, *T. Kawai, *T. Nakashima, "Impact of Optical Purity on Light Harvesting Property in Supramolecular Nanofibers", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 4516-4521. 査読有
- ◎▲4. Y. Hashimoto, *T. Nakashima, M. Yamada, J. Yuasa, G. Rapenne, *T. Kawai, "Hierarchical Emergence and Dynamic Control of Chirality in a Photoresponsive Dinuclear Complex", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 2151-2157. 査読有
- ▲5. S. Kaname, Y. Haketa, N. Yasuda, *H. Maeda, "Cyclic Anion-Responsive π -Electronic Molecules That Overcome Energy Losses Induced by Conformation Changes" *Org. Lett.* **2018**, *20*, 3268-3272. 査読有
- ▲6. G. Hirata, *H. Maeda, "Pyrrole-Based Anion-Responsive π -Electronic Molecules as Hydrogen-Bonding Catalysts" *Org. Lett.* **2018**, *20*, 2853-2856. 査読有
- ▲7. Y. Nakakuki, *T. Hirose, *K. Matsuda, "Synthesis of Helical Analogue of Kekulene: a Flexible π -Expanded Helicene with Large Helical Diameter Acting as a Soft Molecular Spring", *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 15461-15469. 査読有
- ◎▲8. Y. Nakakuki, *T. Hirose, H. Sotome, H. Miyasaka, *K. Matsuda, "Hexa-peri-hexabenz[7]helicene: Homogeneously π -Extended Helicene as a Primary Substructure of Helically Twisted Chiral Graphenes", *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 4317-4326. 査読有
- ▲9. A. Sakaguchi, *K. Higashiguchi, *K. Matsuda, "Bundle Formation of Supramolecular Fibers of Amphiphilic Diarylethene by Depletion Force", *Chem. Commun.* **2018**, *54*, 4298-4301. 査読有
- ▲10. *T. Nakagawa, Y. Miyasaka, Y. Yokoyama, "Photochromism of a Spiro-Functionalized Diarylethene Derivative: Multi-Colour Fluorescence Modulation with a Photon-Quantitative Photocyclization Reactivity", *Chem. Commun.* **2018**, *54*, 3207-3210. 査読有
- ◎▲11. R. Sathy, J. Kumar, R. Métivier, M. Louis, K. Nakatani, N. M. T. Mecheri, A. Subhakar, K. G. Thomas, *T. Kawai, *T. Nakashima, "Enantioselective Light Harvesting with Perylene-3,9-dimide Guests on Self-Assembled Chiral Naphthalenediimide Nanofibers",

Angew. Chem. Int. Ed. **2017**, *56*, 15053-15057. 査読有

▲12. R. Li, *T. Nakashima, *T. Kawai, "A Self-Contained Photoacid Generator for Super Acid Based on Photochromic Terarylene", *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 4339-4341. 査読有

▲13. N. Maeda, T. Hirose, *K. Matsuda, "Discrimination between Conglomerates and Pseudoracemates Using Surface Coverage Plots in 2-D Self-Assemblies at the Liquid/Graphite Interface", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, *56*, 2371-2375. 査読有

▲14. Y. Haketa, *H. Maeda, "Dimension-Controlled Ion-Pairing Assemblies Based On π -Electronic Charged Species" *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 2894-2909. 査読有

◎▲15. K. Kawamura, K. Osawa, Y. Watanobe, Y. Saeki, N. Maruyama, *Y. Yokoyama, "Photocyclization of Photoswitches with High Enantioselectivity in Human Serum Albumin in an Artificial Environment", *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 3181-3184. 査読有

▲16. Y. Hashimoto, T. Nakashima, D. Shimizu, *T. Kawai, "Photoswitching of an Intramolecular Chiral Stack in a Helical Tetrathiazole", *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 5171-5174. 査読有

▲17. W. Naito, N. Yasuda, T. Morimoto, Y. Shigeta, H. Takaya, I. Hisaki, *H. Maeda, "Doubly N-Methylated Porphyrinoids" *Org. Lett.* **2016**, *18*, 3006-3009. 査読有

▲18. Y. Haketa, R. Takasago, *H. Maeda, " β -Perfluoroalkyl-Substituted Pyrrole as an Anion-Responsive π -Electronic System through a Single NH Moiety" *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 7364-7367. 査読有

▲19. K. Nakamura, N. Yasuda, *H. Maeda, "Dimension-Controlled Assemblies of Modified Bipyroles Stabilized by Electron-Withdrawing Moieties" *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 7157-7160. 査読有

▲20. T. Toyama, K. Higashiguchi, T. Nakamura, H. Yamaguchi, E. Kusaka, *K. Matsuda, "Photoswitching of Conductance of Diarylethene-Gold Nanoparticle Network Based on the Alteration of π -Conjugation", *J. Phys. Chem. Lett.* **2016**, *7*, 2113-2118. 査読有

◎▲21. T. Tsuruoka, R. Hayakawa, K. Kobashi, K. Higashiguchi, *K. Matsuda, *Y. Wakayama, "Laser Patterning of Optically Reconfigurable Transistor Channels in a Photochromic Diarylethene Layer", *Nano Lett.* **2016**, *16*, 7474-7480. 査読有

◎▲22. Y. Uchida, *T. Hirose, T. Nakashima, T. Kawai, *K. Matsuda, "Synthesis and Photophysical Properties of a 13,13'-Bibenzo[b]perylene Derivative as a π -Extended 1,1'-Binaphthyl Analog", *Org. Lett.* **2016**, *18*, 2118-2121. 査読有

▲23. S. Mahvidi, S. Takeuchi, S. Kusumoto, H. Sato, T. Nakagawa, Y. Yokoyama, "Gated Photochromic System of Diarylethene with a Photon-Working Key", *Org. Lett.* **2016**, *18*, 5042-5045. 査読有

▲24. *T. Ubukata, M. Nakayama, T. Sonoda, Y. Yokoyama, H. Kihara, "Highly Sensitive Formation of Stable Surface Relief Structures in Bisanthracene Films with Spatially Patterned Photopolymerization", *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2016**, *8*, 21974-21978. 査読有

◎▲25. T. Nakashima, K. Tsuchie, R. Kanazawa, R. Li, S. Iijima, O. Galangau, H. Nakagawa, K. Mutoh, Y. Kobayashi, J. Abe, *T. Kawai, "Self-Contained Photoacid Generator Triggered by Photocyclization of Triangle Terarylene Backbone", *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, *137*, 7023-7026. 査読有

▲26. *H. Maeda, A. Fukui, R. Yamakado, N. Yasuda, "Dipyrrrolyphenol as a Precursor of π -Electronic Anion That Forms Ion Pairs with Cations" *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 17572-17575. 査読有

▲27. *K. Higashiguchi, G. Taira, J.-i. Kitai, T. Hirose, *K. Matsuda, "Photoinduced Macroscopic Morphological Transformation of an Amphiphilic Diarylethene Assembly: Reversible Dynamic Motion", *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, *137*, 2722-2729. 査読有 他 200 報

A02 公募研究

◎▲1. K. Kuroda, K. Yazaki, Y. Tanaka, M. Akita, *H. Sakai, T. Hasobe, N. V. Tkachenko, *M. Yoshizawa, "A Pentacene-Based Nanotube Displaying Enriched Electrochemical and Photochemical Activities", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, *58*, 1115-1119. 査読有

▲2. T. Yamakado, K. Otsubo, A. Osuka, *S. Saito, "Compression of a Flapping Mechanophore Accompanied by Thermal Void Collapse in a Crystalline Phase", *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 6245-6248. 査読有

◎▲3. T. Yamakado, S. Takahashi, *K. Watanabe, Y. Matsumoto, A. Osuka, *S. Saito, "Conformational Planarization versus Singlet Fission: Distinct Excited-State Dynamics of Cyclooctatetraene-Fused Acene Dimers", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2018**, *57*, 5438-5443. 査読有

◎▲4. X. Wei, W. Wu, R. Matsushita, Z. Yan, D. Zhou, J. J. Chruma, M. Nishijima, G. Fukuhara, T. Mori, *Y. Inoue, *C. Yang, "Supramolecular Photochirogenesis Driven by Higher-Order Complexation. Enantiodifferentiating Photocyclodimerization of 2-Anthracenecarboxylate to Slipped Cyclodimers via 2:2 Complex with β -Cyclodextrin", *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 3959-3974. 査読有

▲5. K. Nagasaki, Y. Inoue, *T. Mori, "Entropy-Driven Diastereoselectivity Improvement in the Paternò-Büchi Reaction of 1-Naphthyl Aryl Ethenes with a Chiral Cyanobenzoate through Remote Alkylation", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2018**, *57*, 4880-4885. 査読有

◎▲6. *H. Sakai, R. Inaya, H. Nagashima, S. Nakamura, *Y. Kobori, *N. V. Tkachenko, *T. Hasobe, "Multiexciton Dynamics Depending on Intramolecular Orientations in Pentacene Dimers: Recombination and Dissociation of Correlated Triplet Pairs", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 3354-3360. 査読有

▲7. *Y. Yue, Y. Norikane, R. Azumi, E. Koyama, "Light-induced Mechanical Response in Crosslinked Liquid-Crystalline Polymers with Photoswitchable Glass Transition Temperatures", *Nat. Commun.* **2018**, *9*, 3234. 査読有

◎▲8. *M. Hada, *S. Saito, S. Tanaka, R. Sato, M. Yoshimura, K. Mouri, K. Matsuo, S. Yamaguchi, M. Hara, Y. Hayashi, F. Röhrlich, R. Herges, *Y. Shigeta, *K. Onda, R. J. D. Miller, "Structural Monitoring of the Onset of Excited-State Aromaticity in a Liquid Crystal Phase", *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 15792-15800. 査読有

▲9. M. Toyoda, Y. Imai, *T. Mori, "Propeller Chirality of Boron Heptaaryldipyrrromethene. Unprecedented Supramolecular Dimerization and Chiroptical Properties", *J. Phys. Chem. Lett.* **2017**, *8*, 42-48. 査読有

◎▲10. S. Ishida, *T. Fukaminato, D. Kitagawa, S. Kobatake, S.-N. Kim, T. Ogata, *S. Kurihara, "Wavelength-Selective and High-Contrast Multicolour Fluorescence Photoswitching in a Mixture of Photochromic Nanoparticles", *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 8268-8271. 査読有

◎▲11. J. Su, *T. Fukaminato, J.-P. Placial, T. Onodera, R. Suzuki, H. Oikawa, A. Brosseau, F. Brisset, R. Pansu, K. Nakatani, *R. Métivier, "Giant Amplification of Photoswitching by a Few Photons in Fluorescent Photochromic Organic Nanoparticles", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, *55*, 3662-3666. 査読有

◎▲12. *M. Yamamura, K. Sukegawa, D. Okada, Y. Yamamoto, *T. Nabeshima, "Chiroptical Switching Caused by Crystalline/Liquid Crystalline Phase Transition of a Chiral Bowl-Shaped Molecule", *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 4585-4588. 査読有

▲13. *M. Yamamura, T. Hasegawa, *T. Nabeshima, "Synthesis of Phosphorus-Centered and Chalcogen-Bridged Concave Molecules: Modulation of Bowl Geometries and Packing Structures by Changing Bridging Atoms", *Org. Lett.* **2016**, *18*, 816-819. 査読有

◎▲14. *S. Saito, S. Nobusue, E. Tsuzaka, C. Yuan, C. Mori, M. Hara, T. Seki, C. Camacho, S. Irle, S. Yamaguchi, "Light-melt adhesive based on dynamic carbon frameworks in a columnar liquid crystal phase", *Nat. Commun.* **2016**, *accepted*. 査読有

- ▲15. S. Osumi, *S. Saito, C. Dou, K. Matsuo, K. Kume, H. Yoshikawa, K. Awaga, *S. Yamaguchi, "Boron-doped nanographene: Lewis acidity, redox properties, and battery electrode performance", *Chem. Sci.* **2016**, *7*, 219-227. 査読有
- ▲16. T. Kosaka, Y. Inoue, *T. Mori, "Toroidal Interaction and Propeller Chirality of Hexaarylbenzenes. Dynamic Domino Inversion Revealed by Combined Experimental and Theoretical Circular Dichroism Studies", *J. Phys. Chem. Lett.* **2016**, *7*, 783-788. 査読有
- ◎▲17. D. Kato, H. Sakai, *N. V. Tkachenko, *T. Hasobe, "High-Yield Excited Triplet States in Pentacene Self-Assembled Monolayers on Gold Nanoparticles through Singlet Exciton Fission", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, *55*, 5230-5234. 査読有
- ▲18. *M. Yamamura, D. Hongo, *T. Nabeshima, "Twofold Fused Concave Hosts Containing Two Phosphorus Atoms: Modules for the Sandwich-Type Encapsulation of Fullerenes in Variable Cavities", *Chem. Sci.* **2015**, *6*, 6373-6378. 査読有
- ▲19. *M. Yamamura, K. Sukegawa, *T. Nabeshima, "Tuning the Depth of Bowl-Shaped Phosphine Hosts: Capsule and Pseudo-Cage Architectures in Host-Guest Complexes with C₆₀ Fullerene", *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 12080-12083. 査読有 他 139 報

研究項目 A03 メゾ-マクロスコピック複合光応答分子集合系の機能開拓 A03 計画研究

- ▲1. K. Mutoh, N. Miyashita, K. Arai, *J. Abe, "Turn-On Mode Fluorescence Switch by Using Negative Photochromic Imidazole Dimer", *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 5650-5654. 査読有
- ▲2. H. Kuoriwa, Y. Inagaki, K. Mutoh, *J. Abe, "On-Demand Control of the Photochromic Properties of Naphthopyrans", *Adv. Mater.* **2019**, *31*, 1805661. 査読有
- ▲3. K. Yamamoto, I. Gomita, H. Okajima, A. Sakamoto, K. Mutoh, *J. Abe, "Electrochromism of Fast Photochromic Radical Complexes Forming Light-Unresponsive Stable Colored Radical Cation", *Chem. Commun.* **2019**, *55*, 4917-4920. 査読有
- ▲4. I. Yonekawa, K. Mutoh, *J. Abe, "Visible Light Intensity Dependent Negative Photochromism of Binaphthyl-Bridged Phenoxy-Imidazolyl Radical Complex", *Chem. Commun.* **2019**, *55*, 1221-1224. 査読有
- ◎▲5. X. Dong, F. Tong, K. M. Hanson, R. O. Al-Kaysi, *D. Kitagawa, *S. Kobatake, *C. J. Bardeen, "Hybrid Organic-Inorganic Photon-Powered Actuators Based on Aligned Diarylethene Nanocrystals", *Chem. Mater.* **2019**, *31*, 1016-1022. 査読有
- ◎▲6. *D. K. Sharma, S. Hirata, V. Biju, *M. Vacha, "Stark Effect and Environment Induced Modulation of Emission in Single Halide Perovskite Nanocrystals", *ACS Nano* **2019**, *13*, 624-632. 査読有
- ▲7. I. Yonekawa, K. Mutoh, Y. Kobayashi, *J. Abe, "Intensity-Dependent Photoresponse of Biphotochromic Molecule Composed of a Negative and a Positive Photochromic Unit", *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 1091-1097. 査読有
- ▲8. A. Tokunaga, K. Mutoh, T. Hasegawa, *J. Abe, "Reversible Valence Photoisomerization between Closed-Shell Quinoidal and Open-Shell Biradical Forms", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 1833-1837. 査読有
- ◎▲9. D. Kitagawa, H. Tsujioka, F. Tong, X. Dong, *C. J. Bardeen, *S. Kobatake, "Control of Photomechanical Crystal Twisting by Illumination Direction", *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 4208-4212. 査読有
- ◎▲10. F. Tong, D. Kitagawa, X. Dong, *S. Kobatake, *C. J. Bardeen, "Photomechanical Motion of Diarylethene Molecular Crystal Nanowires", *Nanoscale* **2018**, *10*, 3393-3398. 査読有
- ◎▲11. S. Hatazaki, D. K. Sharma, S. Hirata, K. Nose, T. Iyoda, A. Kölsch, *H. Lokstein, *M. Vacha, "Identification of Short- and Long-Wavelength Emitting Chlorophylls in Cyanobacterial Photosystem I by Plasmon-Enhanced Single-Particle Spectroscopy at Room Temperature", *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 6669-6675. 査読有
- ◎▲12. B. J. Lidster, S. Hirata, S. Matsuda, T. Yamamoto, V. Komanduri, Y. Tezuka, *M. Vacha, *M. L. Turner, "Macrocyclic Poly(p-phenylenevinylene)s by Ring Expansion Metathesis Polymerization and their Characterization by Single-Molecule Spectroscopy", *Chem. Sci.* **2018**, *9*, 2934-2941. 査読有
- ▲13. *S. Hirata, "Intrinsic Analysis of Radiative and Room-Temperature Nonradiative Processes Based on Triplet State Intramolecular Vibrations of Heavy Atom-Free Conjugated Molecules toward Efficient Persistent Room-Temperature Phosphorescence" *J. Phys. Chem. Lett.* **2018**, *9*, 4251-4259. 査読有
- ▲14. Y. Inagaki, Y. Kobayashi, K. Mutoh, *J. Abe, "A Simple and Versatile Strategy for Rapid Color Fading and Intense Coloration of Photochromic Naphthopyran Families", *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 13429-13441. 査読有
- ◎▲15. Y. Kobayashi, H. Okajima, H. Sotome, T. Yanai, K. Mutoh, Y. Yoneda, Y. Shigeta, A. Sakamoto, *H. Miyasaka, *J. Abe, "Direct Observation of the Ultrafast Evolution of Open-Shell Biradical in Photochromic Radical Dimer", *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 6382-6389. 査読有
- ▲16. K. Mutoh, Y. Kobayashi, T. Yamane, T. Ikezawa, *J. Abe, "Rate-Tunable Stepwise Two-Photon-Gated Photoresponsive Systems Employing a Synergetic Interaction between Transient Biradical Units", *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 4452-4461. 査読有
- ◎▲17. E. Hatano, *M. Morimoto, T. Imai, K. Hyodo, A. Fujimoto, R. Nishimura, A. Sekine, N. Yasuda, S. Yokojima, S. Nakamura, *K. Uchida, "Photosalient Phenomena that Mimic Impatiens Are Observed in Hollow Crystals of Diarylethene with a Perfluorocyclohexene Ring", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, *56*, 12576-12580. 査読有
- ◎▲18. D. Kitagawa, K. Kawasaki, R. Tanaka, *S. Kobatake, "Mechanical Behavior of Molecular Crystals Induced by Combination of Photochromic Reaction and Reversible Single-Crystal-to-Single-Crystal Phase Transition", *Chem. Mater.* **2017**, *29*, 7524-7532. 査読有
- ▲19. *S. Hirata, M. Vacha, "Large Reverse Saturable Absorption at the Sunlight Power Level Using the Ultralong Lifetime of Triplet Excitons", *J. Phys. Chem. Lett.* **2017**, *8*, 3683-3689. 査読有
- ▲20. K. Narushima, *S. Hirata, *M. Vacha, "Nanoscale Triplet Exciton Diffusion via Imaging of Upconversion Emission from Single Hybrid Nanoparticles in Molecular Crystals", *Nanoscale* **2017**, *9*, 10653-10661. 査読有
- ▲21. *L. Bujak, T. Ishii, D. K. Sharma, S. Hirata, *M. Vacha, "Selective Turn-On and Modulation of Resonant Energy Transfer in Single Plasmonic Hybrid Nanostructures", *Nanoscale* **2017**, *9*, 1511-1519. 査読有
- ◎▲22. R. Nishimura, K. Hyodo, H. Sawaguchi, Y. Yamamoto, Y. Nonomura, H. Mayama, S. Yokojima, S. Nakamura, *K. Uchida, "Fractal Surfaces of Molecular Crystals Mimicking Lotus Leaf with Phototunable Double Roughness Structures", *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 10299-10303. 査読有
- ▲23. *Y. Ishibashi, *T. Asahi, "Femtosecond Pump-Probe Microspectroscopy of Single Perylene Nanoparticles", *J. Phys. Chem. Lett.* **2016**, *7*, 2951-2956. 査読有
- ◎▲24. K. Mutoh, Y. Kobayashi, Y. Hirao, T. Kubo, *J. Abe, "Stealth Fast Photoswitching of Negative Photochromic Naphthalene-Bridged Phenoxy-Imidazolyl Radical Complexes", *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 6797-6800. 査読有
- ◎▲25. Y. Kobayashi, T. Katayama, T. Yamane, K. Setoura, S. Ito, *H. Miyasaka, *J. Abe, "Stepwise Two-Photon Induced Fast Photoswitching via Electron Transfer in Higher Excited States of Photochromic Imidazole Dimer", *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 5930-5938. 査読有

- ▲26. T. Yamaguchi, Y. Kobayashi, *J. Abe, "Fast Negative Photochromism of 1,1'-Binaphthyl-Bridged Phenoxy-Imidazolyl Radical Complex", *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 906-913. 査読有
27. T. Ikezawa, K. Mutoh, Y. Kobayashi, *J. Abe, "Thiophene-substituted phenoxy-imidazolyl radical complexes with high photosensitivity", *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 2465-2468. 査読有
- ◎▲28. K. Takase, K. Hyodo, M. Morimoto, Y. Kojima, H. Mayama, S. Yokojima, S. Nakamura, *K. Uchida, "Photoinduced Reversible Formation of a Superhydrophilic Surface by Crystal Growth of Diarylethene" *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 6885-6887. 査読有
- ▲29. D. Kitagawa, T. Okuyama, R. Tanaka, *S. Kobatake, "Photoinduced Rapid and Explosive Fragmentation of Diarylethene Crystals Having Urethane Bonding", *Chem. Mater.* **2016**, *28*, 4889-4892. 査読有
- ▲30. *S. Hirata, M. Vacha, "Circularly Polarized Persistent Room-Temperature Phosphorescence from Chiral Aromatics in Air", *J. Phys. Chem. Lett.* **2016**, *7*, 1539-1545. 査読有
- ◎▲31. *D. K. Sharma, S. Hirata, L. Bujak, V. Biju, T. Kameyama, M. Kishi, T. Torimoto, *M. Vacha, "Single-Particle Spectroscopy of I-III-VI Semiconductor Nanocrystals: Spectral Diffusion and Suppression of Blinking by Two-Color Excitation", *Nanoscale* **2016**, *8*, 13687-13694. 査読有
- ◎▲32. K. Mutoh, Y. Nakagawa, A. Sakamoto, Y. Kobayashi, *J. Abe, "Stepwise Two-Photon-Gated Photochemical Reaction in Photochromic [2.2]Paracyclophane-Bridged Bis(imidazole dimer)", *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, *137*, 5674-5677. 査読有
- ▲33. H. Yamashita, T. Ikezawa, Y. Kobayashi, *J. Abe, "Photochromic Phenoxy-Imidazolyl Radical Complexes with Decoloration Rates from Tens of Nanoseconds to Seconds", *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, *137*, 4952-4955. 査読有
- ▲34. K. Arai, Y. Kobayashi, *J. Abe, "Rational Molecular Design for Drastic Acceleration of Color-Fading Speed of Photochromic Naphthopyrans", *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 3057-3060. 査読有
- ◎▲35. T. Yamaguchi, M. F. Hilbers, P. P. Reinders, Y. Kobayashi, A. M. Brouwer, *J. Abe, "Nanosecond Photochromic Molecular Switching of a Biphenyl-Bridged Imidazole Dimer Revealed by Wide Range Transient Absorption Spectroscopy", *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 1375-1378. 査読有
- ◎▲36. J. Okuda, Y. Tanaka, R. Kodama, *K. Sumaru, K. Morishita, T. Kanamori, S. Yamazoe, K. Hyodo, S. Yamazaki, T. Miyatake, S. Yokojima, S. Nakamura, *K. Uchida, "Photoinduced Cytotoxicity of a Photochromic Diarylethene via Caspase Cascade Activation" *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 10957-10960. 査読有
- ▲37. D. Kitagawa, *S. Kobatake, "Photoreversible Current ON/OFF Switching by Photoinduced Bending of Gold-Coated Diarylethene Crystals", *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 4421-4424. 査読有
- ▲38. T. Imagawa, *S. Hirata, K. Totani, T. Watanabe, M. Vacha, "Thermally Activated Delayed Fluorescence with Circularly Polarized Luminescence Characteristics", *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 13268-13271. 査読有
- ▲39. S. Lee, K. Noda, S. Hirata, *M. Vacha, "Position-Dependent Three-Dimensional Diffusion in Nematic Liquid Crystal Monitored by Single-Particle Fluorescence Localization and Tracking", *J. Phys. Chem. Lett.* **2015**, *6*, 1403-1407. 査読有 **他 116 報**

A03 公募研究

- ◎▲1. L. Wilbraham, M. Louis, D. Alberga, A. Brosseau, R. Guillot, F. Ito, F. Labat, *R. Métivier, *C. Allain, *I. Ciofini, "Revealing the Origins of Mechanically Induced Fluorescence Changes in Organic Molecular Crystals", *Adv. Mater.* **2018**, *30*, 1800817. 査読有
- ◎▲2. T. Kadoyama, R. Nishimura, M. Toma, K. Uchida, *K. Tawa, "Study on the Mechanism of Diarylethene Crystal Growth by In Situ Microscopy and the Crystal Growth Controlled by an Aluminum Plasmonic Chip", *Langmuir* **2018**, *34*, 4217-4223. 査読有
- ◎▲3. T. Noji, M. Matsuo, N. Takeda, A. Sumino, M. Kondo, M. Nango, S. Itoh, *T. Dewa, "Lipid-Controlled Stabilization of Charge-Separated State ($P^+Q_B^-$) and Photocurrent Generation Activity of a Light-Harvesting-Reaction Center Core Complex (LH1-RC) from *Rhodospseudomonas palustris*", *J. Phys. Chem. B* **2018**, *122*, 1066-1080. 査読有
- ◎▲4. R. Kashihara, M. Morimoto, S. Ito, *H. Miyasaka, *M. Irie, "Fluorescence Photoswitching of a Diarylethene by Irradiation with Single-Wavelength Visible Light", *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 16498-16501. 査読有
- ▲5. T. Ube, T. Kosaka, H. Okazaki, K. Nakae, *T. Ikeda, "A Block Copolymer of Crosslinkable Polythiophene and Removable Poly(ethylene oxide) for Preparing Heterostructures of Organic Semiconductors", *J. Mater. Chem. C* **2017**, *5*, 1414-1419. 査読有
- ▲6. T. Ube, K. Kawasaki, *T. Ikeda, "Photomobile Liquid-Crystalline Elastomers with Rearrangeable Networks", *Adv. Mater.* **2016**, *28*, 8212-8217. 査読有
- ▲7. K. Mukai, M. Hara, *S. Nagano, *T. Seki, "High-Density Liquid-Crystalline Polymer Brushes Formed by Surface Segregation and Self-Assembly", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, *55*, 14028-14032. 査読有
- ◎▲8. *M. Morimoto, R. Kashihara, K. Muto, Y. Kobayashi, J. Abe, H. Sotome, S. Ito, H. Miyasaka, *M. Irie, "Turn-on mode fluorescence photoswitching of diarylethene single crystals", *CrystEngComm* **2016**, *18*, 7241-7248. 査読有
- ◎▲9. *F. Ito, H. Sato, Y. Ugachi, N. Oka, S. Ito, H. Miyasaka, "Properties and Evolution of Emission in Molecular Aggregates of a Perylene Ammonium Derivative in Polymer Matrices", *Photochem. Photobiol. Sci.* **2015**, *14*, 1896-1902. 査読有
- ▲10. T. Takeshima, W.-y. Liao, Y. Nagashima, K. Beppu, M. Hara, *S. Nagano, *T. Seki, "Photoresponsive Surface Wrinkle Morphologies in Liquid Crystalline Polymer Films", *Macromolecules* **2015**, *48*, 6378-6384. 査読有
- ◎▲11. T. Sumi, T. Kaburagi, M. Morimoto, K. Une, H. Sotome, S. Ito, H. Miyasaka, *M. Irie, "Fluorescent Photochromic Diarylethene That Turns on with Visible Light", *Org. Lett.* **2015**, *17*, 4802-4805. 査読有 **他 100 報**

<ホームページ・新聞等> 領域 HP (<http://photosynergetics.jp/>) を開設し平均 1 回/週 程度の頻度で情報更新すると共に News Letter も閲覧可能とし、専門研究者・一般の方々にも広く情報を公開した。朝日新聞(2016.8.27、2016.7.28)、日本経済新聞(2019.2.13、2019.2.4、2014.8.25)、日経産業新聞(2019.2.19、2017.11.16、2016.10.19、2014.9.25)、日刊工業新聞(2018.3.20、2017.7.7、2017.7.13)、京都新聞(2017.9.9、2016.8.27、2016.6.9)、科学新聞(2016.12.9)など新聞報道、Website 報道が計 87 件あった。

<主催シンポジウム等の状況> 公開シンポジウム・領域会議を計 8 回(2014.9、2015.1.6、2016.1、2017.1.5、2018.1、2019.1)、若手の会を 3 回(2015.7、2016.8、2017.9)、国際会議を計 2 回(2016.6、2018.5)行った。物性科学領域横断研究会に 2014 年から 5 年連続で参画した。3 領域および 4 領域合同シンポジウムを 2 回(2016.11、2017.12)行った。フランス CNRS と LIA(Laboratoire International Associé)を締結し、国際シンポジウムを 2 回(2017.3、2018.3)行った。

<アウトリーチ活動> 大阪大学・早稲田大学・筑波大学・愛媛大学・大阪市立大学・立教大学でのオープンキャンパス等での紹介計 100 件、高校生対象の出前授業・体験教室 74 件などのアウトリーチ活動を行った。

7. 研究組織（公募研究を含む。）と各研究項目の連携状況（2 ページ以内）

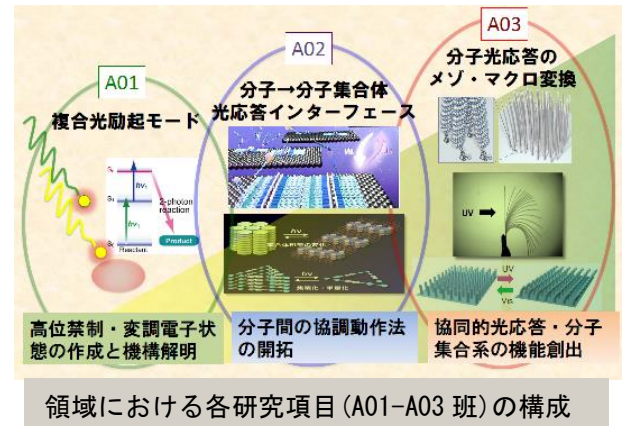
領域内の計画研究及び公募研究を含んだ研究組織と領域において設定している各研究項目との関係を記述し、総括班研究課題の活動状況も含め、どのように研究組織間の連携や計画研究と公募研究の調和を図ってきたか、組織図や図表などを用いて具体的かつ明確に記述してください。

本新学術領域では分子系の電子励起状態利用に関わる 3 種の制限を克服する手法として、多重・多光子励起、電子状態変調、分子の協調的応答、集合体設計等の方法を開拓・発展させ、従来の“1 光子吸収と 1 分子応答”を超える“複合励起と複合光応答”の学理構築と応用を行い、光子有効利用を可能とする高次光機能分子・分子集合系の構築と今後の光利用関連諸課題の解決に向けた共通基盤の確立を目的とし、その達成のために 3 つの計画項目（A01-A03 班）を組織した。

A01 班 特異電子状態へのアプローチ：多重、多光子励起による高位禁制電子状態や局所場を利用した変調電子状態からの光反応、励起子分裂・融合等を対象に、実験・理論両面から本研究推進の基礎となる複合励起による素過程制御と新規光応答・反応開拓を目的とした。時間分解計測、計算化学、分子合成などの研究者から構成され、レーザー誘起現象、高位電子状態、プラズモン応用、励起子融合・分裂、半導体量子ドット等を対象に研究を行った。[計画班 4, 公募班 6 (H27-28)、7 (H29-30)]

A02 班 多分子協調場と手法の開拓：分子・分子集合体の設計と合成手法を用い、1 分子レベルの機能からメソスコピック・マクロレベルの物性変化への展開に必要となる“加算性”や“増幅性”が確保できる光機能システムや反応網の開拓・確立を目的として、分子・分子集合体の合成・開発、新規物性開拓を中心とした研究者が、分子開発、界面分子配列、集積化、反応場構築などの観点から研究を行った。[計画班 4, 公募班 7 (H27-28)、7 (H29-30)]

A03 班 高次光応答分子システムの構築：分子集合系に特徴的な協奏的、協同的な複合過程を利用し、複合励起と応答を顕在化できる光駆動する分子集合系、多光子吸収により駆動する光応答系や、光強度に閾値を持つ光応答系など、1 光子 1 分子光反応では実現できない高度な集合体構造変化に基づく複合光応答システム創出が目的である。このために、分子設計・開発、集合体構築、固体化学、材料化学、固体物性測定などの研究者を中心に、主に集合体の応答に基軸を置いた研究を行った。[計画班 5, 公募班 6 (H27-28)、7 (H29-30)]



これらの 3 班の研究グループの連携の第 1 のタイプ(タイプ 1A)は、“新物質の合成・開発” → “物性や反応機構の測定” → “計測から得られた物性の計算化学による解明”、また逆に“計算化学や物理化学測定からの新物質デザイン提案” → “新物質の開発”のような基軸となる共同研究である。A01-A03 各々の班の中にも新物質の合成・開発、また物性測定や計算化学を専門とした研究者が含まれており、班内における連携も行われると共に、班間でも新物質開発に重点を置くグループと専門性の高い計測・理論グループとの間で、試料提供と物性測定、測定結果に基づく新規物質やシステムの開発が行われた。(次ページの表 7-1 において、専門の異なるグループ間の共同研究の多くが対応する。) 共同研究タイプ 1B は、新物質開発を中心とした研究グループ間、あるいは計測や理論の研究グループ間の共同研究であるが、相互に異なる専門性を組み合わせ、新規光応答分子系や複合励起手法の開発をめざす研究であり、分子系や集合体系の高次化・複合化、新手法開発や相互の保有装置の補完による新規複合励起法の発展に寄与した(表において専門の類似したグループ間の共同研究の多くが対応)。

共同研究タイプ 1C は新物質の合成・開発と物性・反応機構測定などの異なる専門の研究者間の共同研究ではあるが、タイプ 1A とは異なり、多重・多光子過程などの従来の応答とは異なる複合励起による応答を目指した分子や物質開発を行う(表において、専門の異なるグループ間の共同研究のいくつかが対応)。これらタイプ 1 の共同研究は、主に 2 つ程度のグループ間で展開される共同研究であり、基本となる分子・集合系の効率的開発、複合励起と複合応答の開発・発展等に大きく寄与した。

まずは基盤となるタイプ 1 を中心とした共同研究推進のために、総括班からも各研究グループに対して積極的にアドバイスを行うとともに、計画班・公募班の代表者、分担者、連携研究者が提供可能な特殊性の高い技術、機器、試料などのリストを領域 HP の会員専用欄に掲載し、各班員からの共同研究企画提案を募つ

た。特に研究者からの自発的な提案は、総括班の視点とは異なる発想、専門性の高いものも多く、研究の発展に大きく寄与した。これらの自発的な研究については、必用な場合には総括班に提案書を提出していただき、コアグループで領域目標の観点から審査を行った後、共同研究実施に必用な物品費や旅費などに対して総括班経費からの援助を行い共同研究の支援を行った（10件程度/年）。

これらの結果、H26-28年の前半では領域内において、A01-A01(6件)、A02-A02(11件)、A03-A03(5件)、A01-A02(10件)、A01-A03(22件)、A02-A03(13件)、の計67件、また後半(H29-30)にはA01-A01(13件)、A02-A02(9件)、A03-A03(5件)、A01-A02(20件)、A01-A03(28件)、A02-A03(13件)と96件の共同研究が行われた。なおこの件数は基本的に共同研究に参加した計画・公募班の数であり、同じ組み合わせでも別テーマの共同研究も存在するので、実質的な共同研究数はこの数よりは20%程度多い。さらに前半のみに参画した公募班との研究が継続している場合も存在するがこの表には含まれていない。いずれにせよ、後半には異なる項目(A01、A02、A03)間の共同研究も全体として増加し、専門の異なる研究者間の共同研究が多数行われた(共同研究全体の67%)。また公募班-計画班、公募班-公募班の共同研究数は53、13件であり(全体の69%)、公募班と計画班の連携のみならず公募班間の共同研究による展開も行われ、参画した公募班も領域の趣旨を理解し本新学術領域の発展に寄与した。

一方、相補的のみならず相乗的な連携効果により、新たな光応答、研究手法の開拓・実現を志向する共同研究は特に重要である(タイプ2)。このようなタイプ2型の共同研究も、基本的にはタイプ1の中から発展するものも多く、このために、必要に応じて領域会議や総括班会議等で共同研究の進捗状況を確認しながら、目標・方向性を討議しつつ研究を進展させた。これらの結果、新物質開発-光反応ダイナミクス測定-電子状態理論計算の連携研究による大分子系の高位電子励起状態の新規計算手法の確立、新物質開発-光物性評価-超解像イメージングの連携研究による1波長蛍光OFF-ON-OFFスイッチング手法の開発と長時間単分子拡散追跡法への応用、新物質合成-反応性評価-レーザー捕捉の連携研究による可逆的メゾスコピック並進運動の実現など、異なる専門領域の研究者の相乗的な連携による研究がなされた。

平成27年(2015)末から開始した国際活動支援班による国際共同研究も順調に増加し、約100件の共同研究が行われた。特にフランスとの間ではCNRSプログラムとして日仏国際共同研究所プログラム(LIA)が採択され、今後の中・長期的な国際共同研究基盤が構築された。以上のように、計画班-計画班のみならず、計画班-公募班、公募班-公募班の領域内共同研究、また国際共同研究が実施された。これらの共同研究の多くは、本新学術領域終了後も継続されており、中長期的にも効率的な研究推進の基盤が構築できた。また分子や光に関する他の新学術領域とも共同シンポジウムを開催し(2回/2年)、領域間の情報交換、共同研究にも留意した。

グループ(主な分担研究者) 主な専門	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34		
1 宮坂(長澤、ハッ橋ら) Phys			●	●				●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
2 井村 Phys							●																												●	
3 重田(鎌田) Theo, Phys	●								●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
4 玉井(増尾) Phys	●				●							●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
5 Bijou Phys, Mat				●					●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
6 雲林院 Phys																					●															
7 上野 Phys, Mat			●																																	
8 岡 Phys, Theo	●																																			
9 鳥本 Mat	●	●		●	●							●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
10 坂本 Mat			●	●								●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
11 柳井 Theo	●																																			
12 河合(中野、高見ら) Mat	●	●	●	●	●				●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
13 前田 Org, Mat			●	●																																
14 松田(廣瀬、東口) Mat, Org, Phys	●		●	●								●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
15 横山(生方、川村) Org, Mat	●		●	●																																
16 尖戸 Mat, Org																																				
17 斎藤 Org	●		●																																	
18 佐藤 Theo											●				●																					
19 森 Org																																				
20 深港 Mat, Org	●					●						●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
21 羽曾部 Mat, Org			●								●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●
22 則包 Mat, Org																																				
23 阿部(坂本、小林) Mat, Phys	●		●	●							●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
24 朝日(石橋) Phys, Mat	●												●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
25 内田(辻岡、横島ら) Mat, Phys, Theo	●											●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
26 小島 Mat, Org	●	●	●	●																																
27 Vacha(平田) Phys, Mat	●		●	●	●				●								●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	
28 景山 Mat, Phys																																				
29 小野寺 Phys																																				
30 伊藤 Phys, Mat	●	●																																		
31 出羽 Bio, Org	●																																			
32 池田 Mat, Org			●	●	●																															
33 森本 Mat, Org	●		●	●																																
34 田和 Phys, Mat		●							●																											

表 7-1. 各研究グループ間の共同研究相関図。それぞれの色はA01,A02,A03を表し、番号の下線は計画班を示す。各研究グループの専門として、Phys(物理化学・物性物理)、Theo(理論化学)、Org(有機合成)、Mat(材料化学)などの概要を示した。分担者などが含まれる場合、また境界領域の研究グループには複数の専門を示している。

8. 研究経費の使用状況（設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む。）（1 ページ以内）

領域研究を行う上で設備等（研究領域内で共有する設備・装置の購入・開発・運用・実験資料・資材の提供など）の活用状況や研究費の効果的使用について記述してください（総括班における設備共用等への取組の状況を含む。）。

1. 研究領域内の設備・装置の購入・実験試料の利用について

光計測、分子合成、計算化学、材料化学などの多分野の研究者からなる構成される本領域では、多くの研究者が共通で使用する高額機器等は少ないため、総括班として高額な装置は購入していない。一方、広範な分野の研究者の集合体である領域の特徴として、研究者ごとに特殊性の高い種々の技術、機器、試料などが存在する。これらを領域内において有効に活用するために、計画班や公募班の代表者、分担者、協力者ごとに、それぞれが所有する専門技術や特殊機器、また特殊試料の中で共用可能なもののリストを班員専用ページに掲載し（下記）、研究の遂行にあたり特殊装置や特殊試料の共用化を図り、共同研究に有効に活用できるよう配慮した。また、計画班経費・公募班経費等でレーザー光源や測定機器など的高額物品を購入した場合にはこれらの情報を更新し、領域内で迅速に共有されるように配慮した。これらの結果として、設備の共用化、特殊技術の利用などが行われ、研究費の有効利用および効率的な共同研究の実施・発展がなされた。

<p>A01 計画班 研究代表者</p> <p>氏名：宮坂 博</p>  <p>課題名：多重光子過程を利用した光反応の高次制御 所属・役職：大阪大学 大学院基礎工学研究科物質創成専攻 教授 住所：〒560-8531 豊中市待兼山町1-3 e-mail: *****@**.osaka-u.ac.jp</p> <p>共用可能な機器：過渡吸収測定装置：フェムト秒(OPA,NOPA、波長可変範囲：250nm -2.5 μm、パルス幅 20 fs, 150 fs)、ピコ秒(266, 355, 532, 1064nm, OPG 450-700 nm、パルス幅 15 ps)、ナノ秒(266, 355, 532, 1064nm、パルス幅 5 ns)、蛍光寿命測定装置：単一光子計数法(励起波長 260-800nm, IRF 30 ps)、超解像単一分子蛍光測定装置</p> <p>共同研究可能な技術：時間分解ダイナミクス計測、レーザー誘起非線形光応答、単一分子蛍光測定による超解像イメージング</p>	<p>A03 計画班 研究代表者</p> <p>氏名：阿部二朗</p>  <p>課題名：高速フォトクロミズムを基盤とする実働分子マシン開発 所属・役職：青山学院大学 理工学部 化学・生命科学科 教授 住所：〒252-5258 神奈川県相模原市中央区淵野辺 5-10-1J棟506室 e-mail: *****@**.aoyama.ac.jp</p> <p>共用可能な機器：ナノ秒時間分解分光測定装置、円二色性分散計、MicroPoint MOSAIC2、ナノ粒子解析装置、電子スピン共鳴装置、飛行時間型質量分析計</p> <p>共同研究可能な技術：ナノ秒過渡吸収スペクトル測定、高速フォトクロミック分子合成</p>
---	--

班員専用ページに掲載されている専門技術や特殊機器、また特殊試料リストの例

2. 総括班・国際活動支援班経費の主な使途

上記のように総括班経費は基本的には大きな設備備品には使用せず、領域シンポジウム、領域会議などへの参加旅費、事務補佐員のための経費、シンポジウム・領域会議等の会場費、予稿集などの印刷費、ホームページ作成・更新およびシンポジウム等準備（予稿の収集、登録業務、予稿集印刷）に支出した。

また、共同研究については、必用な場合には総括班に提案書を提出していただき、総括班のコアグループで審査を行った後、共同研究実施に必用な物品費や旅費などに対して、計画班-計画班、計画班-公募班の場合には、総括班から該当計画班に総括班経費を追加配分し共同研究に対する支援を行った（各年度に 5-10 件）。公募班-公募班の共同研究などに対しては、共同研究の打ち合わせ・研究実施の旅費を総括班から支援した。

これらの結果、領域内において各研究班（計画班、公募班）の間で 96 件（平成 29-30 年）の共同研究が行われた。研究ループ間で複数のテーマを進行させているもの、3 グループ以上の共同研究を加えると後半だけでも 120 件以上の共同研究が実施され、これらの成果は国内・国際学会での報告、また論文発表（98 本が既報）されており、全論文数（共同研究による重複を除いた）965 本の 1 割を超える。

総括班としては、若手育成にも組織的に取り組み、若手セミナー（9 回）、若手の会（3 回）、チュートリアル講義（3 回）などを行い、これらの中で必用な場合には、会場費、講師の旅費や謝金、また参加者の旅費の援助を行った。平成 27(2105)年から開始した国際活動支援班による活動では、ヨーロッパ、アジア諸国また米国との間で約 100 件の国際共同研究を実施するとともに、フランスとの間では CNRS プログラムとして“国際共同研究所 LIA”が採択され、中・長期的な共同研究の継続が可能となった。これらの国際共同研究の成果は国内・国際学会での報告、また論文発表（182 本が既報）がなされている。

またこれに関連し、フランスを中心とするヨーロッパのグループとの間で、大学院生、博士研究員、助教など若手も含めワークショップを 4 回開催した。これらの結果、本新学術領域の終了時（平成 31 年 3 月末）までに、本領域の研究グループから若手研究者・大学院生の国内・国際学会における若手・大学院生の講演賞・ポスター賞 216 件（国際学会 40 件を含む）の受賞、また学協会の若手の賞 30 件の受賞があり、以上の取り組みが若手育成にも貢献できた。

・研究費の使用状況（（１），（２），（３）を合わせて３ページ以内）

（１）主要な物品明細（計画研究において購入した主要な物品（設備・備品等。実績報告書の「主要な物品明細書」欄に記載したもの。）について、金額の大きい順に、枠内に収まる範囲で記載してください。）

年度	品名	仕様・性能等	数量	単価（円）	金額（円）	設置(使用)研究機関
26	赤外分光光度計	Bruker・VERTEX70・ 時間分解仕様	1	14,904,000	14,904,000	青山学院大学
	顕微赤外パッケージシステム	Bruker Optik・TypeTN	1	9,990,000	9,990,000	奈良先端科学技術大学院大学
	LD励起Nd:YLFレーザー	スペクトラ・フィジックス・EMPOWER	1	8,996,832	8,996,832	愛媛大学
	超低振動無冷媒オプティカルクライオスタット	モンタナ・インストゥルメンツ・4200-520NZ	1	7,927,200	7,927,200	関西学院大学
	光化学反応熱熱量計システム	日立ハイテクサイエンス・DSC7000K	1	7,514,640	7,514,640	大阪市立大学
	自動波長可変OPA	スペクトラフィジックス・TOPAS-PMV-2FPM	1	6,973,506	6,973,506	大阪大学
	フェムト秒光パラメトリック増幅器	スペクトラフィジックス・TOPAS-PMV-2FPW	1	6,973,506	6,973,506	独立行政法人産業技術総合研究所
	過渡吸収測定用サブナノ秒可視・近赤外光源	ユニソク・RIsPekTLS-40	1	5,397,840	5,397,840	東京工業大学
	真空蒸着装置	サンユー電子・SVC-700TMSG/7PS80	1	4,990,572	4,990,572	龍谷大学
	レーザー光源	スペクトラフィジックス・Millennia eV	1	4,459,968	4,459,968	早稲田大学
27	超短パルスレーザー再生増幅器	スペクトラフィジックス・SPITFIRE ACE	1	10,996,128	10,996,128	愛媛大学
	自動波長可変OPA	スペクトラフィジックス・TOPAS-PFM2-VSW	1	7,175,358	7,175,358	大阪大学
	小型蛍光寿命測定装置	浜松ホトニクス・Quantaurs-Tau	1	5,320,000	5,320,000	青山学院大学
	分光光度計	日立ハイテクサイエンス	1	4,665,600	4,665,600	龍谷大学
28	絶対 PL 量子収率測定装置	浜松ホトニクス・Quantaurs-QY	1	4,999,320	4,999,320	青山学院大学

(2) 計画研究における支出のうち、旅費、人件費・謝金、その他の主要なものについて、年度ごと、費目別に、金額の大きい順に使途、金額、研究上必要な理由等を具体的に記述してください。

【平成26年度】

・旅費 (以下、旅費は往復交通費、宿泊費)

日本化学会第95春季年会に参加 船橋 834,360円(12名) A02 前田

APC2014に参加・領域紹介 インド・コバラム 802,892円(2名) 総括班(A01 宮坂)

Petrochemistry and Chemical Engineering 学会に参加 米国・ネバダ 560,570円(1名) A01 重田

・人件費・謝金

博士研究員雇用費 5,853,848円 A02 前田

博士研究員雇用費 932,772円 A03 Vacha

事務局事務補佐員雇用費 687,697円 総括班(A02 松田)

・その他

スペクトラフィジックス Spitfire 修理費 1,610,928円 A01 宮坂

HP 作成管理, 公開シンポジウムサポート事務局事務経費等 974,160円 総括班(A01 宮坂)

公開シンポジウム会場費 千里ライフサイエンスセンター 747,900円 総括班(A01 宮坂)

【平成27年度】

・旅費

Pacificchem2015に参加 米国・ホノルル 787,130円(3名) A02 横山

ACS Meetingに参加 アメリカ・サンディエゴ 602,774円(2名) A01 宮坂

PEM2を共同主宰し参加 フランス・トゥールーズ 588,830円(1名) A02 河合

・人件費・謝金

博士研究員雇用費 5,642,915円 A03 Vacha

特任助教雇用費 5,559,174円 A01 宮坂

博士研究員雇用費 5,246,474円 A02 前田

特任助教雇用費 4,449,635円 A03 小島

研究支援者雇用費 4,380,786円 A03 阿部

博士研究員雇用費 3,539,216円 A01 重田

博士研究員雇用費 2,172,660円 A01 玉井

事務局事務補佐員雇用費 1,286,393円 総括班(A02 松田)

学生 RA 経費 1,125,488円 A03 Vacha

技術補佐員雇用費 616,567円(1名) A02 河合

学生 RA 経費 606,246円 A02 松田

・その他

HP 管理, 公開シンポジウムサポート等事務局事務経費業 781,800円 総括班(A01 宮坂)

公開シンポジウム会場費 東工大 351,910円 総括班(A01 宮坂)

若手の会開催費用 1,286,314円 総括班(A02 松田)

【平成28年度】

・旅費

共催国際ワークショップに参加 フランス・カシヤン 1,068,370円(4名) 国際活動支援班(A01 宮坂、伊藤)

共同研究実施 フィンランド・タンペレ工科大 966,790円(1名2回) 国際活動支援班(A02 羽曾部)

日本化学会第97春季年会に参加 横浜 903,370円(10名) A02 前田

Prof. Pratik SEN インド・インド工科大カンプール校より招へい 760,000円 国際活動支援班(A01 宮坂)

・人件費・謝金

特任助教雇用費 5,581,419円 A01 宮坂

博士研究員雇用費 5,279,687円 A02 前田

博士研究員雇用費 5,007,460円 A01 井村

博士研究員雇用費 4,730,860円 A01 重田

研究支援者雇用費 4,402,166円 A03 阿部

博士研究員雇用費 4,017,933円 A01 玉井

特任助教雇用費 2,897,574円 A02 河合

技術補佐員雇用費 2,712,415円(5名) A02 河合

博士研究員雇用費 1,486,132円 A01 重田(鎌田)

事務局事務補佐員雇用費 1,284,619円 総括班(A02 松田)

・その他

HP 管理, 公開シンポジウムサポート事務局事務経費 439,020 円 総括班 (A01 宮坂)

LD 励起 Nd:YLF レーザー 修理 1 式 2,972,160 円 A01 宮坂

【平成 29 年度】

・旅費

共催国際ワークショップに参加 フランス・リール 4,150,171 円 (16 名) 国際活動支援班 (6 グループ)

ICP2017 に参加 フランス・ストラスブール 1,703,420 円 (4 名) A01 宮坂

共同研究打合わせ・日仏ミニシンポジウム参加 フランス・高等師範学校カシャン校
1,572,002 円 (5 名) 国際活動支援班 (A01 宮坂 A03 阿部)

Dr. Xi-Chan Gao 中国・遼寧師範大より招へい 1,500,000 円 国際活動支援班 (A01 重田)

共同研究実施 米国・カリフォルニア大学リバーサイド校 800,000 円 国際活動支援班 (A03 小島)

Dr. Rémi Métivier フランス・高等師範学校カシャン校より招へい 748,323 円 国際活動支援班 (A02 松田)

ICP2017 に参加 フランス・ストラスブール 707,520 円 (2 名) A02 松田

ICP2017 に参加 フランス・ストラスブール 640,640 円 (2 名) A02 横山

・人件費・謝金

博士研究員雇用費 5,677,997 円 A03 Vacha

博士研究員雇用費 5,054,956 円 A01 井村

技術補佐員雇用費 5,047,498 円 (6 名) A02 河合

博士研究員雇用費 4,756,979 円 A01 重田 (鎌田)

博士研究員雇用費 4,721,622 円 A01 重田

博士研究員雇用費 4,413,319 円 A02 松田

博士研究員雇用費 4,267,322 円 A01 玉井

事務局事務補佐員雇用費 1,178,859 円 総括班 (A02 松田)

学生 RA 経費 1,082,331 円 A03 Vacha

・その他

HP 管理, 公開シンポジウムサポート事務局事務経費等 731,160 円 総括班 (A01 宮坂)

若手の会開催費用 1,065,774 円 総括班 (A03 阿部)

【平成 30 年度】

・旅費

共同研究打ち合わせ・IUPAC Photochem に参加 アイルランド・ダブリン 1,749,911 円 (4 名) 国際活動支援班
(A01 宮坂)

共同研究実施 フィンランド・タンペレ工科大 1,258,020 円 (1 名 3 回) 国際活動支援班 (A02 羽曾部)

APC2018 に参加 台湾・台北 838,620 円 (6 名) A01 宮坂

日本化学会第 98 春季年会に参加 神戸 689,660 円 (17 名) A02 前田

共同研究実施 ドイツ・キール大 654,904 円 (1 名) 国際活動支援班 (A02 齊藤)

IUPAC Photochemistry に参加 アイルランド・ダブリン 594,380 円 (2 名) A03 内田

共同研究実施 英国・オックスフォード大 589,280 円 (1 名) 国際活動支援班 (A02 松田)

・人件費・謝金

博士研究員雇用費 5,522,513 円 A01 井村

博士研究員雇用費 4,071,488 円 A01 玉井

技術補佐員雇用費 3,476,594 円 (4 名) A02 河合

博士研究員雇用費 3,315,200 円 A02 松田

博士研究員雇用費 3,299,875 円 A03 Vacha

博士研究員雇用費 2,599,001 円 A01 重田 (鎌田)

学生 RA 経費 1,800,000 円 A02 前田

学生 RA 経費 1,202,590 円 A03 Vacha

・その他

HP 管理, 公開シンポジウムサポート事務局事務経費等 792,180 円 総括班 (A01 宮坂)

(3) 最終年度 (平成 30 年度) の研究費の繰越しを行った計画研究がある場合は、その内容を記述してください。

該当しません。

9. 当該学問分野及び関連学問分野への貢献度（1 ページ以内）

研究領域の研究成果が、当該学問分野や関連分野に与えたインパクトや波及効果などについて記述してください。

光化学は学際的な分野であり、有機、無機、高分子、物理化学等の伝統的な分野のみならず、固体化学、材料化学、応用物理学などの広範な専門分野を持つ研究者が集合して共通の研究を展開している。以下には、まず光化学分野における貢献、次に関連学問分野への貢献について述べる。

光化学研究分野における貢献

本新学術領域では学際的な研究領域である光化学において、共通の制限である ① 高位電子状態からの迅速な最低励起状態への緩和 (Kasha 則)、② 集合体系における多くの励起分子間の迅速な消滅過程 (励起子 annihilation) などの光量子の“質”や“量”に関わる制限、また③ 選択則によるアクセス可能な電子状態の制限 (多様性の制限) の超克を目的に、基礎的な物理化学・物性物理系の実験・理論研究者から材料化学やデバイス作製にいたる広い専門領域を持つ研究者が参加して研究を展開した。

これらの3種の制限を超える現象については、これまでもいくつかの例は報告されていたが、極めて限られた条件のもとに起こりうる例外的な現象と認識されていた。しかし本新学術領域では、これらの現象に関わる原理や機構の解明を通じて広範囲の系においても可能な過程になりうることを立証するとともに、これらの制限を超えた多くの分子・分子集団系を実証することにより “1 光子吸収による最低励起状態からの1分子応答” という従来の光励起分子の利用を超えた研究結果を多数示した。これらの3種の制限の超克に関わる研究例は、本新学術領域の研究者のみならず国際的にも増加しており、他国の研究者から “Kasha 則を超える光応答” の総説 (Chem. Rev. 2017) の発表、光化学領域の総説誌 (J. Photochem. Photobiol. C) における本新学術領域の Special Issue の発行 (2018) など国際的にも重要な研究方向と認識されつつある。

本報告書の最初の「目的」の項にも述べたように、電子励起状態分子は人類喫緊の課題である光エネルギー変換や物質変換にも深く関わる。本研究で得られた3種の制限の超克に関わる研究結果は、これらの光エネルギー利用また新規光機能開発に対しても重要な学理を提供できるものと考えられる。

また若手研究者や大学院生の討論会や学協会の受賞数にも示されるように、今後の光化学研究分野の発展につながる多数の若手人材の育成に寄与するとともに、国際共同研究においては短期のものだけでなく、フランスとの間の CNRS プログラム “国際共同研究所 (LIA)” の採択に代表されるように、中長期的な共同研究体制も構築できた。この体制については光化学領域における日仏の長年にわたる共同研究の歴史に因るところも大きい。技術や試料の流失等を懸念せず実施可能な信頼関係を持つ国際共同研究体制の維持・発展に貢献できた。特に昨今の基礎的科学的研究予算の実質的縮小は、多くの先進国で大きな問題となっているが、信頼関係を保った国際共同研究は、減少した予算の相互補填の点からも研究の発展に寄与することが可能であり、この観点からも今後の我が国の光化学分野の発展に貢献できると考えられる。

関連学問分野への貢献

最初にも述べたように、光化学研究領域は学際分野であり、個々の研究者は光化学領域のみならず他のいくつかの研究領域の研究者としても活動を行っている。したがって、本新学術領域の研究結果、及びこれらに基づく新研究分野の開拓、次代を担う若手人材の育成、相互の信頼関係に基づく国際共同研究体制の維持・構築の観点からの貢献については、他の関連学問分野の発展に対しても同様と考えられる。

一方、本新学術領域では、基礎的な物理化学・物性物理系の実験・理論研究者から材料化学やデバイス作製にいたる広い専門領域を持つ研究者により、多くの共同研究が展開された。この中では A01 の物理化学領域を中心とするグループと光化学応答・機能開拓に関する発展的研究を担う A02 および A03 班との連携も多数行われた。これらの共同研究では、新物質の開発 (A02, A03) とその光応答計測と解析・理論化学的機構解明 (A01) 等の共同研究のみならず、A01 で開発した複合励起による特異電子状態へのアプローチ、新励起種の生成法や計算科学の予測、また研究の切り口が、A02, A03 の研究を先導した例も多く存在する。昨今の化学関連研究分野においても学際的な共同研究は多数行われているが、一方、基礎物理化学系分野で開拓された新手法、新現象や理論予測が実際の物質作製を先導するケースは、必ずしも多くはないように思われる。本領域は電子励起状態に関わる課題を中心としており、そのため物理化学系研究者の役割は他分野と比べると大きいと思われるが、これらの基礎的な物理化学系研究者が新規光応答性分子の設計・開発、またその応用に積極的に貢献できたことは意義を持つと考えられる。また逆に新物質開発研究者の開発した分子系の応答が、基礎的な物理化学分野の発展に貢献した場合も多く、このような相乗的な研究の進め方は、効果的な共同研究の例として関連研究分野の今後の発展にも寄与しうると考えられる。

10. 研究計画に参画した若手研究者の成長の状況（1 ページ以内）

研究領域内での若手研究者育成の取組及び参画した若手研究者（※）の研究終了後の動向等を記述してください。

※研究代表者・研究分担者・連携研究者・研究協力者として参画した若手研究者を指します。

研究領域内での若手研究者育成の取組

本新学術領域では若手育成のために、① 若手セミナー、② 若手の会、③ チュートリアル講義の開催、また平成 27 年 (2015) から開始した国際活動支援班による ④ 国際共同研究への積極的参加などを総括班・国際活動支援班の活動として推進した。

① 若手セミナー (9 回) : 平成 26-30 年度 (2014-2018) の期間中に開催された領域公開シンポジウム、領域会議 (非公開で研究進捗状況の報告・討議) に引き続き (2014 年 9 月の最初の公開シンポジウム兼領域説明会を除く)、研究代表者、分担者また連携研究者などの研究室に所属する助教、特任助教、博士研究員などの若手研究者や大学院生の口頭発表による若手セミナーを開催した (国際シンポジウムに続くセミナーは英語で実施)。毎回 5-10 件程度の口頭発表に対して、評価委員や研究代表者等から研究内容に対する質問のみならず、発表方法についても助言を行い、若手のプレゼンテーションスキルの向上も図った。

② 若手の会 (3 回) : 合宿形式として (2 日) 領域内外の著名研究者を毎回 3 から 5 名講師に招き、若手研究者、大学院生を含む研究協力者に対する講義を行うと共に、若手参加者はポスター発表を行い、これらの講師からの研究内容への質問、発表形式などへの助言を得る機会とした。単に講義から最先端の知識を得るだけでなく、専門の異なる研究者に対する研究内容の説明・質疑応答を通して、広い学問領域における自らの研究の位置づけなどを考察できる能力の涵養を図った。

③ チュートリアル講義 (3 回) : 上記の若手の会においても基礎的なチュートリアル講義をいくつか実施したが、公開シンポジウムの前に領域内研究者による量子化学計算、レーザーを用いた測定原理、発光材料の発光収率測定法など、多くの若手研究者が研究を展開するために必要な手法に関わる講義を実施し、研究実施能力の向上にも努めた。

④ 国際共同研究への積極的参加 : 2 年目となる平成 27 年 (2015) 末から開始した国際活動支援班の活動として若手研究者、大学院生の海外研究機関への派遣を行うとともに、海外からの研究者招聘を行い研究代表者や分担者また連携研究者の研究室において研究を実施した。これらの国内の共同研究実施も若手研究者や大学院生の国際性の涵養に寄与した。また国際共同研究拠点が構築されたフランスとの間では、共同研究の進捗状況の報告・今後の展開の討議のためにフランスで開催したワークショップやセミナー (2016 年 11 月、2017 年 3 月、2018 年 3 月) に、国際活動支援班・総括班から旅費を支出し若手の積極的な参加を援助した。これらの結果、たとえば平成 28-29 年度の若手セミナーでは、少数でも外国人が参加している場合には登壇者の多くは自発的かつ積極的に英語で発表を行うなど、国際性を有する若手の成長を確認できた。

これらの若手育成に対する①から④などの取り組みの結果、若手研究者に学協会などからの授賞 (30 件)、討論会などにおける講演賞などの受賞 (216 件、国際学会 40 件を含む) があり、若手育成が順調に行われたと考えられる結果が得られた。

参画した若手研究者の研究終了後の動向

研究期間 (平成 26-30 年度) の間に、34 名の若手研究者の昇任などがあつた。内訳は、助教や特任助教から准教授、あるいは講師から准教授への昇進が 10 名、博士研究員や助教から (助教を経た場合も含め) 講師への昇任は 6 名、博士研究員や任期付き特任助教などから助教への昇任は 9 名、大学院生から助教や特任助教などへの採用は 3 名、博士研究員や助教などから国研などの研究員への移動は 6 名となっている。これらの中には、特任助教のインド IISER 准教授への転出も含む。また助教在職中に公募班代表者として本新学術領域に参画した若手研究者の中で、研究期間中に 1 名が講師に 2 名が准教授へと昇任した。また国研などへ移動した 6 名も、特任助教のフランス CNRS の常勤研究員への採用や産総研テニュアトラック研究員への移動など、前職よりは雇用形態の安定した職や優れた研究環境を持つ機関への転出であり、本新学術領域研究終了後の研究展開を期待できる移動であった。

また、定義 (39 歳以下) としては若手ではないが、研究期間の間に准教授や国研研究員から教授へ 13 名が昇任した (計画班代表者として本新学術領域申請時の平成 25 年度には准教授であったが、採択決定の平成 26 年度に教授に昇任した 2 名を含む)。この 13 名の内訳は、計画班代表者 4 名、公募班代表者 6 名、計画班分担者 3 名となっている。またこれらの中で、今後の研究の新展開に十分な期間を有する 40 歳台前半で教授に昇任したメンバーは 10 名あつた。

以上のように、本新学術領域に参画した多くの若手研究者が、研究の加速を期待できる研究環境や職を得ており、新教授を含め「高次複合光応答」の研究結果をふまえた発展・展開が期待できると考えられる。

11. 総括班評価者による評価（2 ページ以内）

総括班評価者による評価体制や研究領域に対する評価コメントを記述してください。

1. 総括班評価者の構成

○ 国内評価委員

増原 宏	台湾国立交通大学 応用化学系・講座教授、	(専門)	レーザーマイクロ化学
入江正浩	立教大学 未来分子研究センター・客員研究員、	(専門)	光機能分子化学
伊藤 正	大阪大学 ナノサイエンス教育研究センター・特任教授、	(専門)	光物性物理学
戸部義人	台湾国立交通大学 応用化学系・講座教授、	(専門)	構造有機化学

○ 海外評価委員

P. V. Kamat	ノートルダム大学・教授 (米国)、	(専門)	光分子材料科学
J. Hofkens	ルーバンカトリック大学・教授 (ベルギー)、	(専門)	単一分子光計測
A. M. Brouwer	アムステルダム大学・教授 (オランダ)、	(専門)	光機能分子化学

2. 総括班評価者のコメント

国内（日本人）メンバー4名（戸部委員は平成29年度から）は、総括班会議、領域会議、またシンポジウムに参加いただき、助言、評価コメントをいただいていた（2回/年）。またこれらのコメントやアドバイスについては、一部をNews Letterの巻頭言に掲載している。

海外評価委員には電子メール等で意見・助言をいただくと共に、海外で開催される国際学会やシンポジウムにおいて直接会見し助言をいただいた。また2016年3月にはこの2年間の研究進捗状況を、英文報告書（77ページ）として送付し、書面にて評価コメントをいただくとともに、また2016年6月開催の国際シンポジウム（大阪）には出席いただき、いくつかの研究グループへの現地訪問を含め、直接助言をいただいた。研究実施期間中における各委員からの評価・助言については中間評価報告書にも記しているが、“全体としての研究の進捗状況としては良好、一部の研究班の進展の遅れに対する具体的助言、共同研究の推進、本新学術領域の趣旨を理解した研究の位置付けの徹底、また理論科学者との連携”などに集約される。

最終評価については、領域の目的、全体概要、総括班・国際活動支援班の活動、全ての計画・公募班の研究結果を最終報告書（英文84ページ）として作製し、上記7名の評価委員に平成31年4月に送付し、書面にて研究結果、共同研究、総括班活動や国際共同研究、若手育成などの観点からの評価を得た。その結果、以下に示すように上記の観点から判断して良好に進展したとの評価を得た。

2. コメントの具体的内容（領域終了後）

国内評価委員 1: PhotoSygenetics と名付けた学理の構築に向けて、光異性化・光スイッチ分子とレーザー分光を核に、多くの光化学、分光学、有機化学、高分子科学などの関連研究者を集約し、重層的な研究体制を構築し、柔軟な運営の下、共同研究を含めダイナミックな研究推進が行われた。凝縮系反応における位相緩和や新しい超解像顕微鏡を可能にする複合励起、反応の加算および増幅を実現した分子協調、多分子多光子反応を基盤とする機能開拓において目覚ましい展開を示した。その先進的な成果は950報以上の論文として報告され、光化学関連の国際会議では、本新学術のメンバーを中心とする日本人の貢献が他国を圧倒している。このような高いレベルの研究活動は、フランスとの間では中長期的拠点形成（日仏国際共同研究所）につながり、一方本新学術関係の若手研究者、大学院生の受賞も非常に多く、次の世代にPhotoSygeneticsの学理と応用研究が継承されていくものと期待できる。今後は、各研究者がこの新学術プロジェクトの位置づけと成果をもとに、国際的な研究のマップの中で世界の主役の立場を担っていただけるものと信じている。

国内評価委員 2: 本プロジェクトは従来の「1光子吸収—1分子応答」系を超えた高次複合光応答分子システムを新たに構築することをめざして進められた。励起状態間の光励起をフェムト秒2パルス励起により可能とし、励起状態制御により反応を制御する試みに成功している。このKasha則の制限を破る成果は、まさに本プロジェクトのめざした方向に合致している。三重項—三重項消滅過程に基づくアップコンバージョン、プラズモン結合系における光反応制御、プラズモン近接場による非共鳴2光子、3光子過程の観測など、従来の「1光子吸収—1分子応答」系にない高次光応答が見出されている。1分子レベルから多分子レベルあるいは分子集合体レベルの新機能の実現に向けた研究も進められた。連鎖反応を用いることによる量子収率が1を超える反応系の構築、特異集合形態をもつ分子集合体、液晶、結晶の物性を少数分子の光反応により制御すること、ナノ粒子系における高効率蛍光消光反応系の構築、さらには不斉光反応を分子環境により制御することなど、1分子の光反応を多分子系の光応答につなげる多彩な道筋が示された。分子光スイッチ系としては単純な2値系から多値系への拡張、光反応分子結晶においては、光を用いた結晶表面加工による超撥水表面の作製、結晶形態の精密運動制御、光粉砕反応系の構築などが達成されている。本プロジェクトを推進することにより、研究者間の共同研究が促進され、その結果として研究が拡がりを見せ、また深化したことが認められる。また、国際連携、国際共同研究も盛んにすすめられてきており、特にフランスとの共同研究は評価される。以上、本プロジェクトのめざした「1光子吸収—1分子応答」系を超えた高次複合光応答分子システムの構築は、新しい研究分野を生み出すまでに発展したと評価される。

国内評価委員 3: 分子系の電子励起状態利用にかかわる高速緩和、励起子消滅、アクセス可能な電子励起状態

の制限などを多重・多光子励起、電子状態偏重、分子協調反応、集合体設計などを通じて克服し、従来の一光子吸収と一分子応答を超える複合励起と応答の学理を構築し、その応用としての新規複合励起応答分子系の構築を目的とした。学理探求と新規分子系の構築の目標に対して、3つの班による計画研究の成果はもとより、計画研究と公募研究、およびそれらの間の情報共有、共同研究が有機的に結びついたことにより、高次複合光応答分子システムという1つの学理にまとめ、多様な新規分子システムの開拓に結びついたことは高く評価したい。さらに、国際共同研究を含めて、ポスト新学術領域研究の流れを構築した事も特筆される。本研究領域で行われた高次複合光応答分子システムの開拓は、光化学反応の全体から見ればまだ多くの未踏領域が広がっている。本研究領域で得られた学理、研究手法、反応機構、分子システムを発展させ、より幅広い光化学反応分野への展開を大いに期待したい。

国内評価委員 4: 評価の高い学術誌を中心に 950 編を優に超える数の論文を発表したこと、またこれらの 1 割以上が共同研究としてなされたことは、質・量のいずれの観点からも新学術領域研究として十二分の研究成果を得たものと判断される。さらに重要なことは、高位電子励起状態からの新たな光化学過程の発見とその緻密な解析ならびに分子凝集系や超微粒子における励起子消滅に基づくアップコンバージョンや一重項分裂に関する研究成果を挙げたことであり、これらの成果により本領域研究の目指す「複合励起と応答」の学理の構築を達成したと言っても過言でない。これらの A01 班の成果を核として、多重の分子間協調系の設計と制御による複合的な光応答分子システムの構築、およびメゾ-マクロスコピック系への複合的な光応答の展開によるマクロな機能開拓における研究成果が取り巻くことで、全体として光応答を核とする非常に厚みのある研究が展開された点は高く評価される。とくに、領域代表と計画班員(特に計画班長と事務局)からなる統括グループがイニシアチブを発揮して領域としての研究を主導し、新学術領域研究ならではの成果に結びつけた点は特筆に値する。若手育成や国際連携にも活発に取り組み、次世代の研究者育成と今後の国際連携に繋がる礎を築いたことも、数値には現れない本領域研究の成果として重要なものである。以上のように、本新学術領域研究は、計画を十二分に達成したのみならず次世代に繋がる多くの礎を築いたという点を考慮することにより、計画を上回る成果を挙げたと評価できる。

海外評価委員 1: The research team led by Prof. Miyasaka and 12 other leaders of the executive team have done a remarkable job of managing the project and ensured high productivity, scientific quality of the published work and visibility in the international scene. Through conferences and scientific publications they have succeeded in delivering most of the target objectives. Three groups (A01, A02 and A03) were engaged in collaborative research to deliver above stated goals. All three projects have been well executed and they have made significant efforts to advance the field. These collaborative projects have been very productive with researchers publishing more than 950 papers. The collaboration of researchers seems strong with international researchers. Many young researchers have been recognized with awards. These statistical data show excellent progress made through this project. With the initial success of exploring many new photochemical processes the research team is now set to engage in more challenging research themes. The advances made during the last five years will enable them to provide new leadership in the field and train young scientists.

海外評価委員 2: The research project Photosynergetics has involved a large network of no less than 34 groups, and organizing such a large collaboration is a big challenge. The Executive group led by prof. Miyasaka has managed to do this very well. The output of the program is excellent, as it has led to excellent research results from the top scientists gathered in this network, with many publications in high-impact journals and top-notch specialist publications, which for the progress of science are just as valuable. All research groups involved in Photosynergetics contributed to the program starting from their own strengths. All of the groups are world-class. In addition, many collaborations were established between the 34 teams, but also with researchers related to the program via the International Advisory group. Essentially all teams collaborated with others, which had immediate added value because phenomena could be investigated that each of them could not do alone. Most of these collaborations combined original synthesis capabilities with advanced spectroscopy and theory. Such joint projects were actively stimulated by the Executive Group. It can be expected that the collaborative spirit generated in this network will have a lasting impact on Japanese (photo) science.

海外評価委員 3: The research output of the consortium as presented in the final report is impressive in terms of scientific achievements as well as in the form of published papers. The consortium publishes research in this program in the highest field specific journals, general chemistry, spectroscopy, nano and physical chemistry journals as well as in the highest impact general journals. Next to publications, conference contributions, awards associated to the project are listed in the report and once again testify for the great progress that was achieved along the three lines of research. Thus, the project can be evaluated as extremely successful. In order to reach the ambitious goals and produce the reported progress, a collaboration with as much as 34 groups was setup during the project time. This was an impressive network that has proven to have lasting impact on the Japanese and global research scene. The partners in the project collaborated very well (with multiple interactions between all partners) as can be deduced the metrics listed in joint publications. All 34 groups contributed to the project goals and major efforts were done to integrate the later phase groups nicely within the project. The recommendations formulated in the mid-term report were well received and taken care off. This is a nice example of the managerial qualities of the different management and support teams associated with the project. Another prove of the exemplary managerial in this program can be found in the the compiled final report, the website, the newsletters, the outreach to the general public, and so forth. So, also in this respect (next to science and scientific output) I score this project as outstanding in a global context.