

2023 年度
創発的研究支援事業 年次報告書

研究担当者	倉持 光
研究機関名	自然科学研究機構 分子科学研究所
所属部署名	協奏分子システム研究センター
役職名	准教授
研究課題名	室温・溶液中における単一分子の極限時間分解分光
研究実施期間	2023 年 4 月 1 日～2024 年 3 月 31 日

研究成果の概要

本研究では、単一分子検出感度を有する極限的な時間分解分光法を開発し、室温・溶液中において揺動する分子一つ一つの個性を反映した分子本来の反応性を明らかにし、その多様性の起源と分子の機能発現に果たす本質的な役割を解明することを目指している。

本年度は、室温・溶液中にある基底状態分子の励起エネルギーが揺らぎに応答してどのように変動しているのか調べるため、新たに蛍光励起相関分光法を開発した。昨年度開発した単一分子検出感度を有するフーリエ変換型蛍光励起スペクトル測定では、同軸光路干渉計を用い発生させた、2つの超広帯域光から成るパルスペアを顕微鏡下にある希薄試料溶液に照射し、試料からの蛍光を単一光子計数法を用いて検出する。新たに開発した蛍光励起相関分光法では、検出する光子すべてについて実験室時間フレームでのマクロな検出時間だけでなく、検出された際のパルス間の遅延時間をタグ付けすることで、励起波数分解した蛍光自己相関関数を得る。実際に典型的な色素溶液を対象として原理検証実験を行い、励起波数分解した蛍光自己相関減衰を得ることに成功した。この自己相関関数に基づいて励起スペクトルの自発的な時間変化を追跡することが可能であり、今後は不均一系に応用すると同時に、相互相関測定へと発展させ、不均一系におけるサブアンサンブル間のスペクトル揺らぎの観測を、室温・溶液中で、マイクロ秒時間分解能で実現する。

また、単一分子レベルでの分光計測データを補完するための、バルクな溶液や結晶を対象とした 10 fs 時間分解能を有する超高速分光装置の開発と応用も併行して進めた。その一例として、創発研究者との協働により、シクロオクタテトラエン (COT) で繋がれたペリレンビスイミドダイマーの励起状態において起こる超高速な symmetry-breaking charge separation (SBCS) を観測し、電荷分離状態のエネルギー準位の計算に基づいてその機構を明らかにした。