

研究主幹総評および領域活動概要

I. 評価の概要

対象領域：戦略的国際共同研究プログラム（SICORP）

日本-フランス共同研究「分子技術」

対象期間：2014年12月～2020年3月末日

II. 研究主幹総評

「分子技術 (molecular technology)」は日本発の新しい概念であり、分子を設計、合成、操作、制御、集積するなどし、目的とする機能を創出し、社会的課題の解決に寄与する環境・エネルギー材料や電子材料、健康・医療用材料などへの応用を可能にする技術である。JSTは戦略的創造研究推進事業 CREST 「新機能創出を目指した分子技術の構築」領域、さきがけ「分子技術と新機能創出」領域などにおいて分子技術の研究課題を推進してきた。本プログラムでは、数学、化学、物理学、工学など幅広い分野において高い研究水準を有するフランスと連携することで、日仏の相乗効果により分子技術研究の飛躍的な加速・展開を目指した。

2014年から2016年にかけて計3回の日仏共同公募を実施し、申請課題78件について国内審査を行い、日仏合同審査会における合議の結果、12件を採択した。採択にあたっては、20年、30年後にグリーン・イノベーションやライフ・イノベーションへとつながる明確な目標を掲げ、物理的・化学的・生物学的機能の発現を目的として分子を設計・合成するという分子技術のプロセスが重視された。採択課題は、太陽電池材料、生体適応材料、次世代電池材料、光電変換デバイス、バイオ燃料電池、機能性無機-有機ハイブリッド材料、機能性高分子材料、タンパク質局在履歴イメージング、機能性2次元材料、相転移メモリ素子、イオンセンサーなどへの応用を目指す分子技術を扱う研究であり、科学技術におけるブレークスルーにつながると期待された。

採択された課題は以下の通りである。

1. 「CO₂還元と水素発生のための分子フォトカソード」
2. 「分子性物質のマグネシウム電池用電極材料への展開」
3. 「ハイブリッド3次元構造体の創製分子技術」
4. 「光および化学エネルギー利用のためのポルフィリンナノ構造体制御の分子技術」
5. 「分子集積場によるキラルハイブリッドナノ構造体を用いた光学活性ソフト材料の開発」
6. 「配列制御高分子による革新材料の創出」

7. 「触媒のための新規 2 次元および 3 次元メソスケール構造形成に向けた分子制御ハイブリッドナノビルディングブロックの自己集合」
8. 「分子設計に基づく生体適応型高耐久性 3 次元グルコースバイオ燃料電池の創出」
9. 「配位高分子結晶の分子配列を利用した相転移メモリ素子の開発」
10. 「発蛍光プローブのデザイン・合成による蛋白質機能の細胞内局在履歴の「記憶型」イメージング」
11. 「光機能性を有する共有結合性 2 次元超分子ネットワークの表面合成」
12. 「トランジスタ型超高感度イオンセンサーの開発とセシウムイオン検出への応用」

以下、順番に各課題に言及し、最後に総評を述べる。

1. 「CO₂還元と水素発生のための分子フォトカソード」

本研究は、太陽光を化学エネルギーに変換する新たな分子技術を創成することを目的とした。二酸化炭素還元する Re(I) 錯体触媒と Ru(II) 光増感剤を p 型半導体電極材料 NiO 電極上に固定化することで水素生成反応を示す光カソードを開発し、更に CoO_x を修飾した TaON の光アノードと組み合わせることで、可視光により水を電子源として CO₂ から CO への還元反応を駆動する光電気化学セルの構築に成功した。更に、高活性で電極材料として有望とされる p 型半導体電極材料 CuGaO₂ を新たに開発したことで光電気化学セルの性能を向上させ、従来の光カソードと比較して 2.5 倍の CO 還元率を達成した。分子光触媒システムの開発により太陽光エネルギーと水から二酸化炭素の還元資源化に成功したことは将来のエネルギー資源戦略上も画期的であり、日仏両チームの連携により達成されたことは国際共同研究としての価値も高い。

2. 「分子性物質のマグネシウム電池用電極材料への展開」

本研究は、資源的に制約のないマグネシウムイオンを可動イオンとする二次電池「マグネシウム電池」を実現するために、二価カチオンであるマグネシウムを可逆的に貯蔵・放出することが可能な分子性電極材料を開発することを目的とした。日仏研究チームはイオンの拡散と電子伝導を最適化しつつ設計することで、マグネシウムイオンの可逆的挿入離脱反応と高い電極反応電圧を観察した。開発した電極活性材料の容量はまだ小さいものの、可逆的なマグネシウムイオンの挿入離脱反応を見だし、マグネシウムが二次電池の高電圧正極として機能しうると実証した。リチウム電池より安価で汎用性の高い二次電池として最も有望な次世代電池候補と言われるマグネシウム電池の実現への一歩を踏み出した。今後、電極の更なる高性能化や電解液の検討などにより、実用可能なマグネシウム電池用正極材料の開発を期待したい。

3. 「ハイブリッド 3 次元構造体の創製分子技術」

本研究は、全く新しいハイブリッド 3 次元構造体の創製を目的とした。難易

度の高い研究目標を設定し、日仏の強固な連携により環状化フォールダマー・ペプチドハイブリッド分子の合成に成功したことは極めて画期的な成果である。本成果の日仏共著論文が、最も影響力のある化学雑誌の1つである Nature Chemistry 誌の表紙に採用されており、世界的にも重要な研究成果として注目を集めた。本研究により、合成技術の適用範囲が天然アミノ酸からなるペプチドから人工型のペプチドに一気に広がったことで、次世代創薬を支える中分子医薬品としての大きな戦略を本研究により創出できたと言って良く、医療・化学分野における産業応用研究へ波及するポテンシャルは高く、当該分子技術の更なる発展と社会ニーズに対応した機能性分子の創出が期待できる。

4. 「光および化学エネルギー利用のためのポルフィリンナノ構造体制御の分子技術」

本研究は、生体内に広く存在するヘムやクロフィルの骨格として知られているポルフィリン分子を集積化し、新しい機能性材料の創製を目的とした。研究成果は断片的ながら、機能性ポルフィリンナノ分子集積構造体（デバイス）の構築に向けた概念実証として今後につながる重要な成果を得た。日本側の純正型の研究に対して、フランス側は応用研究への発展を目指すもので、共同研究の難しさをあらためて考えさせられたが、一方では、こうした研究スタイルの異なるチームの連携により今後の新しい展開につながる可能性があることも示せたと言える。若手研究者の活発な交流やワークショップの開催など国際共同研究への積極的な取り組みを通じて、日仏共著論文 6 報を含む 22 報の論文、日仏共同発表 4 件を含む 36 件の学会発表など、研究成果も活発に発信された。

5. 「分子集積場によるキラルハイブリッドナノ構造体を用いた光学活性ソフト材料の開発」

本研究は、次世代光シグナルを発生するための光学材料の開発を目的とした。キラル両親媒性分子と光機能性分子のシンプルな二成分混合系において、誘起円偏光や誘起円偏光ルミネッセンスというこれまでにない物性を持つ円偏光発光材料の作製に成功、 g 値が 0.1 を超える物質を実際に作製し、かつ発光色素の選択により波長や強度を制御できる円偏光ルミネッセンス発現システムを実現するなど、光技術の発展に資する有用な円偏光材料の基盤技術が確立されたと言える。著名な国際誌から共著論文 7 報が出版されたことも大きな成果である。国際交流面では、熊本大学と京都大学に共同研究ラボが設置されたことや、ダブル・ディグリー・プログラムによって両国における博士号を数名が得ているなどは連携による相乗効果といえる。

6. 「配列制御高分子による革新材料の創出」

本研究は、革新的な高分子材料を開発することを目的とし、モノマー配列による新しい機能の創出を目指した。本研究により、高分子のモノマー配列を制御することで、その自己集合挙動を自在に変えることができる現象を観察できたことは高く評価できる。1 種類のモノマー単位で配列が制御された交互共重合体を

合成し、かつ側鎖の配列を制御することに成功し、置換した側鎖によって交互共重合体が液晶性や特異な温度応答性を示す等、新たな特性を見出すことに成功した。研究終了後に関連の論文がドイツ化学会誌に掲載され、プレス発表も行った。これはプロジェクト全体として協調的かつ相補的に進められた成果でもある。この技術は新たな物性や機能の創出、生体材料／構造材料等の革新的な材料開発に活かすことが期待される。

7. 「触媒のための新規 2 次元および 3 次元メソスケール構造形成に向けた分子制御ハイブリッドナノビルディングブロックの自己集合」

本研究は、分子レベルで設計された新しい機能性ハイブリッド材料を創出するための分子技術の確立を目指した。新しいシロキサンビルディングブロックを構築し、これを用いて 3 次元的に配列した新しい構造体を作ったことや新しいナノサイズの中空球構造を構築するなど、いくつかの新規化合物や構造体の創出にて成果をあげた。オリゴシロキサンの官能基を自在に操作できることは、触媒材料の創出に新たな選択肢を提供した。毒性のほとんど無いケイ素化合物をテンプレートに用いた原料で合成される材料は、環境や医療への応用が期待される。また、4 名の学生が日仏共同研究での成果をもとに博士号を取得していることは、共同研究による相乗効果と認められる。本研究の成果を元に、研究代表者は国際ゾルーゲル会議 (ISGS) からライフアチーブメント賞を受賞した。

8. 「分子設計に基づく生体適応型高耐久性 3 次元グルコースバイオ燃料電池の創出」

本研究は、中性条件および血糖値 (1g/L) 程度のグルコース濃度で長期間作動する酵素触媒電極を作り出すことを目的とした。従来手法ではグルコースバイオ燃料電池として十分な効率が得られなかったが、酵素と電極間での電子移動を行うメディエータを開発し、電子輸送能のボトルネックを解消した。メディエータ分子の探索に用いた理論計算による論理的な手法は今後この分野の研究発展に大きく寄与することが予想される。本研究成果は、バイオ燃料電池の実現可能性を進めるための基礎的な段階を進展させたものである。グラフェンオキシドをコアとした電極を用い、適切なメディエータを開発することにより、血液中のグルコースを用いたバイオ燃料電池を開発し、体内デバイスを作製するという社会的意義の大きなデバイス構築に向けて今後が期待される。

9. 「配位高分子結晶の分子配列を利用した相転移メモリ素子の開発」

本研究は、次世代電子デバイスにてメモリ技術のコアとなる材料を分子を使って作り出し、メモリ素子への応用や機能性複合材料につながる研究を目指した。相転移を示す配位高分子 (CP) の各種合成を行い、結晶—非晶相転移を示す CP に関して、光学特性やプロトン伝導性などが調べられ、CP 試料の膜化技術や相転移挙動に関しても知見が蓄積された。金属イオンと有機物からなる結晶中でイオンの流れを光でスイッチングできる新たな材料の合成に成功したことのプレス発表、3 報の日仏共同論文、27 報の日本単独論文の発表がなされた。多

くの日仏交流も行われ、人材育成面でも研究参加者の昇格や Faculty 職への採用など本研究を通じての貢献が見られた。本来の目標であったメモリの革新にはいたっていないことが残念であるが、このような相転移を示す CP の機能を、他の材料の機能と比較検証を行い、今後の応用展開に期待したい。

10. 「発蛍光プローブのデザイン・合成による蛋白質機能の細胞内局在履歴の「記憶型」イメージング」

本研究は、分子ツールをデザイン・合成・生物応用することで、細胞内の蛋白質局在の履歴を可視化することを目指した。最終的に、日本側がフランス側の開発した沈殿型蛍光プローブを用いることで、インスリン非刺激時にもグルコース輸送体 4 (GLUT4) の細胞膜移行を蛍光顕微鏡により細胞内で調べることに成功し国際共同研究の成果を残した。日仏両国間の交流も、双方の学生が延 4 名、1 か月互いの研究室に滞在して共同研究を遂行しており、人材育成の面からも積極的な活動が行われた。当初の計画が順調に実現すれば、本技術の展開により生体イメージング分野の膜タンパク質の細胞内動態の制御機能の解明につながり、大変インパクトの大きな成果が期待される。この日仏チームが、今後も問題点を解決していきながら、当初の目的とする成果に到達することを期待する。

11. 「光機能性を有する共有結合性 2 次元超分子ネットワークの表面合成」

本研究は、固体表面における共有結合性 2 次元分子ネットワークの直接形成技術を用いて、光機能を持つ分子を基本単位として高度に組織化する手法の新規かつ普遍的な構築および光機能性新物質の創成を目的とした。基板上において 2 次元超分子ネットワークの構築とその走査型プローブ顕微鏡 (STM: 走査型トンネル顕微鏡、AFM: 原子間力顕微鏡) を用いてその構造および反応を単分子レベルで解析し、基礎的知見を得ることに成功した。これらの国際共同研究の成果が日仏共同論文として発表されていないことは残念である。本研究は、基礎科学・応用科学の観点から極めて重要である。今回得られた合成手法や基礎的知見をもとに、今後、日仏の共同研究を引き続き進められ、分子エレクトロニクスの分野など表面科学の分野の発展に大いに貢献することを期待したい。

12. 「トランジスタ型超高感度イオンセンサーの開発とセシウムイオン検出への応用」

本研究は、イオン認識機能をトランジスタ素子に取り入れることにより、セシウムイオンを高感度で検出するイオンセンサーを開発することを目的とした。セシウムイオンに対して選択的に錯体を形成するように、カリックスアレンを土台にしたクラウンエーテルを設計・合成し、それらを有機トランジスタのチャネル表面上の脂質単分子膜に固定したセンサーは、セシウムイオンの検出能を示し、他の競合イオン下でも高い選択性も示された。両国から、有機合成化学・コロイド化学・電子デバイスなどの専門家が結集して成果を出せたことは国際共同研究がうまく機能したと認められる。国内外で水の安全性に対する関心が高まるなか、水中のセシウムイオンを選択的に検出できる性能を実証したこと

は重要な成果であり、他のイオン検出への応用も含めて、社会実装可能な有機トランジスタ型イオンセンサーの創製に向けた今後の発展が期待される。

分子技術 (Molecular Technology) のコンセプトのもと、日仏の研究の相乗効果により、分子を基盤とする機能性材料の新しい分野が築かれた。日仏共著論文は、12 チームにより合計 30 報に迫る数の論文が報告され、日本側あるいはフランス側単独では合計 200 報を超える数の論文が報告された。全体の取り組みとしては、フランスあるいは日本において、それぞれが相互訪問することによる共同のシンポジウム・成果報告会 (5 回) が行われ、分子技術の概念およびその有用性・発展性が共有された。個別のプロジェクトにおいても、研究代表者のみならず、その研究室の大学院生などの多くの若手の相互訪問が行われ、これらの若手育成の成果による本分野のさらなる発展が期待される。本プログラムにより分子技術という我が国発の新しい研究分野が、フランスを中心とするヨーロッパでも定着し、今後発展することが約束される国際共同研究となった。

表：各チームの主な成果（研究期間中に国際論文誌に発表された論文数と特許出願数）

#	日本側研究代表者名 【研究期間】	Peer-reviewed journals			特許 出願数
		共著	日本 単独	相手国 単独	
1	石谷 治 【2014年12月～2018年3月】	1	7	3	0
2	大久保 將史 【2014年12月～2018年3月】	2	3	3	1 (相手単独)
3	菅 裕明 【2014年12月～2018年3月】	1	21	0	0
4	林 高史 【2014年12月～2018年3月】	6	13	3	0
5	伊原 博隆 【2015年11月～2019年3月】	7	7	2	2 (日本単独)
6	大内 誠 【2015年11月～2019年3月】	1	6	0	0
7	黒田 一幸 【2015年11月～2019年3月】	0	8	2	0
8	仁科 勇太 【2015年11月～2019年3月】	1	4	5	0
9	堀毛 悟史 【2016年9月～2020年3月】	3	27	2	0
10	菊地 和也 【2016年9月～2020年3月】	2	5	0	2 (相手単独)
11	金 有洙 【2016年9月～2020年3月】	0	2	3	0
12	若山 裕 【2016年9月～2020年3月】	5	45	33	1 (相手単独)

山本 尚 中部大学 分子性触媒研究センター長・教授
加藤 隆史 東京大学大学院工学系研究科 教授

III. 領域活動概要

時期	活動
2014年1月	第1期公募開始（～4月まで募集）
2014年12月	第1期採択課題決定
2014年12月	第1期研究開始
2015年2月	第2期公募開始（～5月まで募集）
2015年3月	第1期合同キックオフミーティング、Japan-France Symposium on Molecular Technology 開催（於パリ）
2015年10月	第2期採択課題決定
2015年11月	第2期研究開始
2016年1月	第2期合同キックオフミーティング（於東京）
2016年2月	第3期公募開始（～4月まで募集）
2016年8月	第3期採択課題決定
2016年9月	第3期研究開始
2017年2月	第1期合同中間報告会、第3期合同キックオフミーティング（於パリ）
2018年3月	第1期研究終了
2018年4月	第1期合同最終報告会、第2期合同中間報告会（於東京）
2019年3月	第2期研究終了 第2期合同最終報告会、第3期合同中間報告会（於パリ）
2020年3月	第3期研究終了
2020年4月	第3期合同最終報告会（於東京）は新型コロナウイルス感染症拡大のため中止

以上