

Award Presentations, Special Lectures | Award Presentations, Special Lectures : Award Presentations, Special Lectures

📅 Thu. Mar 27, 2025 1:00 PM - 2:45 PM JST | Thu. Mar 27, 2025 4:00 AM - 5:45 AM UTC 🏛️

[F]4301(4301, Bldg. 4, Area 4 [3F])

[[F]4301-2pm] Award Presentations, Special Lectures

Chair: Ken Kamikawa, Satoshi Nakata

🇯🇵 Japanese 🏆 CSJ Award for Creative Works

1:00 PM - 1:50 PM JST | 4:00 AM - 4:50 AM UTC

[[F]4301-2pm-01]

Research on Self-Organization in Nonlinear and Nonequilibrium Systems

○Hideki Nabika¹ (1. Yamagata Univ.)

1:50 PM - 1:55 PM JST | 4:50 AM - 4:55 AM UTC

Break

🇯🇵 Japanese 🏆 CSJ Award for Creative Works

1:55 PM - 2:45 PM JST | 4:55 AM - 5:45 AM UTC

[[F]4301-2pm-02]

Design of Novel Reactions Utilizing Quantum Chemical Calculations Based on Small Molecule Activation

○Tsuyoshi Mita^{1,2} (1. WPI-ICReDD, Hokkaido Univ., 2. JST-ERATO)

非線形・非平衡系における自己組織化に関する研究

(山形大理) ○並河 英紀

Research on Self-Organization in Nonlinear and Nonequilibrium Systems (*Faculty of Science, Yamagata University*) ○Hideki Nabika

Nonequilibrium self-organization refers to the spontaneous formation of ordered structures in reaction fields far from thermodynamic equilibrium, accompanied by energy dissipation. This phenomenon fundamentally differs from self-assembly in equilibrium systems without dissipation and can give rise to unique spatiotemporal structures due to the nonlinear reaction processes. In this presentation, we will discuss the underlying principles of this phenomenon by examining specific experimental systems that highlight the nonlinear and nonequilibrium nature of self-organization.

Keywords : *Self-organization; Nonequilibrium; Nonlinear; Liesegang; Amyloid β*

自己組織化 (self-organization) とは、熱力学平衡から離れた、つまり非平衡な反応場において、エネルギー散逸を伴いながら自発的に秩序構造を形成する現象である。散逸を伴わない平衡系でみられる自己集合 (self-assembly) とは本質的に異なり、反応素過程の非線形性に起因する特異的な時空間構造を創発することができる。このような非線形・非平衡系における自己組織化は、微視的な生命現象から巨視的な宇宙規模の現象に至るまで、自然界に広く存在する複雑系の時空間構造形成を支配する普遍的原理として位置づけられる。本講演では、このような非線形・非平衡系における自己組織化現象に関し、(1) 非線形反応を有する反応拡散現象に関する研究と (2) 生体内の非平衡性を考慮した自己組織化に関する研究の二つに焦点を絞り議論を行う。

非線形性を有する反応拡散現象は、自然界に見られる多様な周期性を持った時空間構造の形成に関わっており、その複雑性ゆえに様々な分野の科学者の関心を集めている。その一つに、物質の拡散と反応の協同作用により等比級数的周期構造を形成させるリーゼガング現象がある (図 1)。リーゼガング現象は自然界でみられる類似構造の規範モデルとしての可能性が様々な分野で取り上げられており、その素過程ならびに全貌の解明は化学分野以外からも関心が寄せられている。しかし、その素過程には

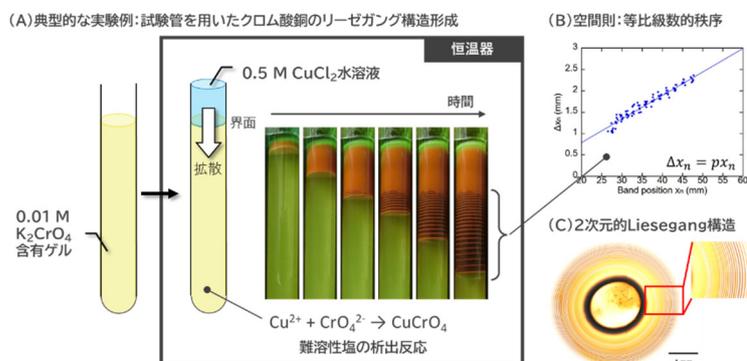


図 1. (A) クロム酸カリウム含有ゲルへの銅イオンの拡散により析出するクロム酸銅のリーゼガング構造. (B) 周期的な析出領域の空間規則性は、空間則と呼ばれる等比級数に従う. (C) シャーレを用いた二次元空間におけるリーゼガング構造の例.

大別して pre-nucleation モデルと post-nucleation モデルの二つが提唱されており、また、各モデルには複数の細分化されたモデルもあり、現象発見から一世紀以上たった今も反応機構の統一的理解には至っていない。この様な背景を踏まえ、本講演では、金属イオン還元反応を組み込んだリーゼガング現象を活用し¹⁾、各素過程の定量解析を実験とシミュレーションの双方から進め²⁾、各素過程の支配因子が周期構造形成段階を制御することに主眼を置いた統合モデルを提案する³⁾。この統合モデルは先行する二つのモデルを包含するものであり、リーゼガング現象の素過程ならびに全貌解明へつながる統合的議論を切り拓くものである。

後者の生体内の非平衡性を考慮した自己組織化に関する研究では、脳内で進行するアミロイドβタンパク質の自己組織化について、脳内の物質流束・非平衡性を考慮したマイクロ流路システムを構築し、従来の閉鎖系・平衡系 *in-vitro* 実験では捉えきれなかった物質流束のある開放系・非平衡系での自己組織化の特殊性について議論を行う。具体的には、閉鎖系と開放系とにおける、タンパク質自己組織化の成長速度ならびに熱力学的安定構造や細胞膜に対する活性の差に関する実験結果を紹介する⁴⁾。これらの成果は、生体内の物質流束・非平衡性が、生体関連分子の自己組織的な生理活性を支配している因子の一つになり得ることを示すものである。生命システムの根幹を成す現象の多くに自己組織的な分子間相互作用が関与していることを考慮すると、この知見は極めて重要である。特に、構造自由度の高い生体高分子の自己組織化において、閉鎖系・平衡系とは本質的に異なる構造が開放系・非平衡系にて形成される可能性を示した意義は大きいものである。この成果はアルツハイマー病などの神経変性疾患の自己組織的な分子機構解明を含めた生命科学研究全般に新たな視点をもたらすものと期待できる。更に、高分子をはじめとした物質系における自己組織化構造の制御へ応用することで、従来の閉鎖系・平衡系では達成できない速度論・熱力学的特性を有する自己組織化構造の構築を可能にするなど、材料科学分野などへの波及効果も期待できるものである。

- 1) Liesegang Patterns Engineered by a Chemical Reaction Assisted by Complex Formation. H. Nabika, M. Sato, K. Unoura, *Langmuir*. **2014**, *30*, 5047.
- 2) (a) Role of Nuclei in Liesegang Pattern Formation: Insights from Experiment and Reaction-Diffusion Simulation, M. Itatani, Q. Fang, K. Unoura, H. Nabika, *J. Phys. Chem. C*. **2018**, *122*, 3669.
(b) Role of Electrolyte in Liesegang Pattern Formation, M. Matsue, M. Itatani, Q. Fang, Y. Shimizu, K. Unoura, H. Nabika, *Langmuir*. **2018**, *34*, 11188.
(c) Role of Stochasticity in Helical Self-Organization during Precipitation, K. Tsushima, M. Itatani, Q. Fang, H. Nabika, *Langmuir*. **2023**, *39*, 249.
- 3) Pattern Formation in Precipitation Reactions: the Liesegang Phenomenon, H. Nabika, M. Itatani, I. Lagzi, *Langmuir*. **2020**, *36*, 481.
- 4) (a) Promoted Aggregation of Aβ on Lipid Bilayers in an Open Flowing System, A. Iida, M. Abe, M. Nochi, C. Soga, K. Unoura, H. Nabika, *J. Phys. Chem. Lett.* **2021**, *12*, 4453.
(b) Changes in Adsorption, Aggregation, and Diffusion Nature of Amyloid β on a Lipid Membrane in an Open System, A. I.-Adachi, H. Nabika, (revision submitted).

小分子活性化を基盤とした量子化学計算による新規反応設計

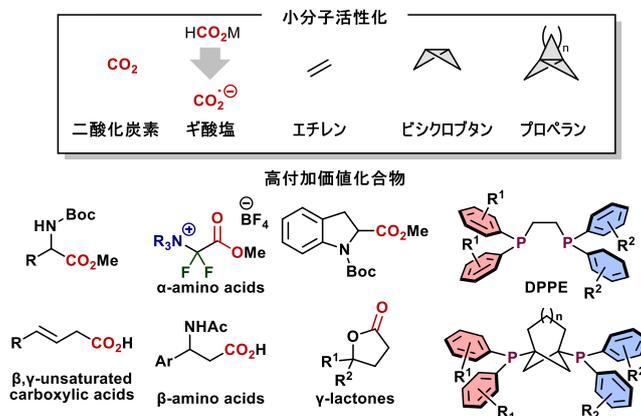
(北大 WPI-ICReDD¹・JST-ERATO²) ○美多 剛^{1,2}

Design of Novel Reactions Utilizing Quantum Chemical Calculations Based on Small Molecule Activation (¹WPI-ICReDD, Hokkaido Univ., ²JST-ERATO) ○Tsuyoshi Mita^{1,2}

The development of novel molecular transformation reactions leveraging organic synthetic chemistry is a critical challenge in building a sustainable society, and numerous organic reactions have been proposed to date. Among these, approaches utilizing small molecules, such as CO₂, an abundant and readily available carbon resource, have garnered significant attention. We have successfully developed new organic synthetic methods employing such small molecules, enabling the efficient synthesis of high-value-added compounds. More recently, leveraging the low computational cost of small molecules, we have also succeeded in incorporating quantum computational chemistry into reaction design.

Keywords : Organic Synthesis

有機合成化学を駆使した新しい分子変換反応の開発は、持続可能な社会の構築において重要な課題であり、これまでに多くの有機反応が提案されてきた。特に入手が容易な炭素資源である CO₂ などの小分子を活用する手法は注目を集めている。発表者は、これらの小分子を利用した新たな有機合成手法を開発し、高付加価値化合物を効率的に合成することに成功してきた¹。さらに最近では、小分子化合物の低計算コストという特徴を活かし、量子計算化学を取り入れた反応設計にも成功した^{2,3}。本講演では、これらの成果について紹介する。



References:

- (a) Mita, T.; Chen, J.; Sugawara, M.; Sato, Y. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2011**, *50*, 1393-1396. (b) Michigami, K.; Mita, T.; Sato, Y. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 6094-6097.
- (a) Takano, H.; Katsuyama, H.; Hayashi, H.; Kanna, W.; Harabuchi, Y.; Maeda, S.; Mita, T. *Nat. Commun.* **2022**, *13*, 7034. (b) Takano, H.; Katsuyama, H.; Hayashi, H.; Harukawa, M.; Tsurui, M.; Shoji, S.; Hasegawa, Y.; Maeda, S.; Mita, T. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2023**, *62*, e202303435. (c) Krishnan, C. G.; Takano, H.; Katsuyama, H.; Kanna, W.; Hayashi, H.; Mita, T. *JACS Au* **2024**, *4*, 3777-3787.
- (a) You, Y.; Kanna, W.; Takano, H.; Hayashi, H.; Maeda, S.; Mita, T. *J. Am. Chem. Soc.* **2022**, *144*, 3685-3695. (b) Mangaonkar, S. R.; Hayashi, H.; Takano, H.; Kanna, W.; Maeda, S.; Mita, T. *ACS Catal.* **2023**, *13*, 2482-2488.