

光駆動自励振動結晶

－ 速度定数が変化する反応系が生み出す協奏的力学機能 －

(北大院理) ○景山義之

Light-driven self-oscillatory crystal — Concerted mechanical function generated in a reaction system with varying kinetic rate constants (¹*Faculty of Science, Hokkaido University*) ○Yoshiyuki Kageyama

Macroscopic functions of multimolecular systems of molecular machines under non-equilibrium conditions attract increasing attention, with the aim of constructing life-like autonomous objects and realizing autonomous molecular robots. Such research will take advantage only when the composition of the system continuously changes and consequently continues to perform mechanical work, even when the energy supply is constant without any information. Such a system is known as far-away-from-equilibrium, which is the *antonym* of steady state.¹ The composition of a multi-molecular object under a steady condition is generally determined by the reaction kinetic coefficients in the object. It means that concerted mechanisms to oscillate or fluctuate the kinetic coefficients are required for far-from-equilibrium dynamics. In our light-driven self-oscillatory crystal,² reversible photoisomerization-induced phase-transition of the crystal acts as a bifurcation for switching the kinetic coefficients of the photoisomerization. The oscillation in the component and the repetitive morphological change causes the oscillation in the free energy of the object to realize mechanical work. The physical background of the light-powered behavior will be discussed.

Keywords : *Dissipative Self-organization, Autonomous Chemical System, Molecular System for Energy Conversion, Systems Chemistry, Supramolecular Motor*

生命体の化学的模倣や、自律分子ロボットの実現などを目指し、機能性分子を集めた多分子系の、非平衡環境での力学的挙動がにわかに関心を集めるようになってきた。このような研究は、エネルギーの供給方向やタイミングなどの指図が付随しなくても、一定のエネルギー供給下で対象物の組成が継続的に変化し、結果として実効的な力学挙動を継続できるようになることで、初めて意義を持つようになる。このような「平衡から離れる振る舞い」は、対象物の組成が一定になる定常状態と対義の関係にある（が、現状では同義のものと捉えた論文が席卷している）¹。一定環境に置かれた系の分子組成は、揺らぎなどの効果を除けば、系内に介在する反応速度係数の比によって決まる。すなわち、「平衡から遠く離れる振る舞い」の実現には、反応速度係数がシステムレベルで適宜変化することが必須である。演者らの光駆動自励振動結晶²では、光異性化が誘起する結晶相転移が分岐現象となって、光異性化の反応速度係数を変化させることで実現している。加えて、結晶の自由エネルギーが自律変動することと、それにより力学的な仕事の実現できるようになることを、併せて議論する。

1) Discussion about the terminologies is written in Y. Kageyama and G. Maruta, *arXiv*:2211.06147.

2) Light-driven self-oscillatory crystal was firstly reported in T. Ikegami, Y. Kageyama, K. Obara, and S. Takeda, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, 55, 8239.