

自動反応経路探索を用いる触媒・発光材料の 機構解析と機械学習の利用

(近畿大学理工学部・JST さきがけ) 畑中 美穂

近年、自動反応経路探索技術の発達に伴い、基底状態だけでなく励起状態における反応経路を網羅的に探索することが可能になり、中間体や遷移状態(TS)、ポテンシャルの交差点におけるエネルギーや分子構造の情報が比較的簡単に得られるようになってきた。[1] 本講演では、二種の材料(触媒・発光材料)を例に挙げ、自動反応経路探索を用いるメカニズムの解明や、機械学習を利用した高効率な解析について述べる。

【1】 亜鉛触媒を用いる不斉アルドール反応の立体選択性発現機構の解明

生体内で C-C 結合生成を促進する酵素の一つにアルドラーゼがある。アルドラーゼを模倣した不斉亜鉛錯体を触媒として用いることで、水存在下でのアルドール反応が高収率・高立体選択的に進行することが報告されている。[2] そこで、本反応の立体選択性発現機構を明らかにするため、自動反応経路探索の一つである「人工力誘起反応法」を用い、C-C 結合生成段階の TS を網羅的に探索した。その結果、253 個の TS 構造が得られた。ここで、網羅的探索によって、全ての重要な遷移状態構造が得られるという保証はないため、得られた全ての構造を検証し、重要な構造を見逃していないか確認する必要がある。この手順を効率化するため、TS 構造を教師なし学習の一つである K-means 法を用いてクラスタリングしたところ、構造の違いを特徴付ける原子間距離を抽出することができた。

【2】 ランタノイド発光材料の配位子設計指針の構築

ランタノイド三価陽イオン(Ln^{3+})の f-f 遷移による発光は、周囲環境の変化に対して、発光波長は変わらないが、発光強度が大きく変化するという特徴を持つ。そこで、 Ln^{3+} 錯体の発光強度を決める因子の一つである一重項基底状態(S0)と三重項状態(T1)のポテンシャルの交差点に着目し、様々な配位子を持つ Ln^{3+} 錯体について計算した結果をデータベース化した。その結果、T1 の局所安定構造から S0, T1 の交差点への構造変化は局所的であるため、fingerprint がよい記述子となることが分かった。講演では、データベースから、どのような配位子設計の指針が抽出できるか議論する。

【参考文献】

- [1] S. Maeda, K. Ohno, K. Morokuma, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 3683 (2013).
[2] S. Itoh, T. Tokunaga, S. Sonoike, M. Kitamura, A. Yamane, S. Aoki, *Chem. Asian J.* **8**, 2125 (2013).