

新機能創出を目指した分子技術の構築
平成 26 年度採択研究代表者

H29 年度 実績報告書

前田 理

北海道大学大学院理学研究院
教授

反応経路自動探索法を基盤とする化学反応の理論設計技術

§ 1. 研究実施体制

(1)「前田」グループ

- ① 研究代表者: 前田 理 (北海道大学大学院理学研究院、教授)
- ② 研究項目
 - ・化学反応の理論設計技術の創出へ向けた人工力誘起反応法の汎用化
 - ・人工力誘起反応法を用いた化学反応の機構解析

§2. 研究実施の概要

本研究では、コンピュータを用いる化学反応の機構解析や設計において、その効率と信頼性を抜本的に向上する可能性がある技術として、反応経路自動探索法(人工力誘起反応法)の開発に取り組んでいる。これを、人工力誘起反応法を拡張し、有機反応、触媒反応、光化学反応、結晶構造転移など、様々な化学反応へと適用できるよう汎用化していくことによって達成する。29年度は、人工力誘起反応法を搭載した **GRRM17** プログラムの整備とその配布に向けた取り組み、金属表面反応における化学反応の反応経路ネットワーク構築技術の開発、分子寿命(分子の耐久性)の予測技術の開発などを実施した。

①人工力誘起反応法を搭載した **GRRM17** プログラムの整備とその配布に向けた取り組み

人工力誘起反応法を搭載した **GRRM17** プログラムを、アカデミックユーザー向けに無償配布する準備を行った。**GRRM17** では、分子系への応用に限定されるが、人工力誘起反応法の利用が可能である。具体的には、与えられた化学組成に対するグローバル反応経路地図の自動作成、目的に応じた限定探索オプションを使用した半グローバル反応経路地図の自動作成、指定した反応物と生成物間の最短反応経路の自動計算、大域的最安定構造および安定な局所安定構造群の自動探索、異なる電子状態間のポテンシャル交差領域内エネルギー極小点の自動探索、**ONIOM** 法と組み合わせた巨大分子の反応経路の自動探索などが、**GRRM17** プログラムによって実行できる。併せて、マニュアルやチュートリアルなどを掲載したホームページを構築し、ユーザーの利便性に配慮する取り組みを行った。(URL: <https://afir.sci.hokudai.ac.jp>) また、機能の概要を解説した論文(URL: <https://doi.org/10.1002/jcc.25106>)を執筆し、ユーザーへの認知を促した。

②金属表面反応の反応経路ネットワーク構築技術の開発

人工力誘起反応法を表面反応の探索を実施できるよう手法の枠組みを拡張した。表面反応だと、ほとんどバリアーのない、分子のマイグレーションに対する経路が膨大に出てきてしまう問題があり、それらの計算に余計な時間がかかっていた。そこで、前年度までに開発した新たな反応速度解析手法である速度定数行列縮約法を人工力誘起反応法と組み合わせることにより、速度論的に重要な経路とそうでない経路を区別し、重要でない経路(ほとんど障壁のない、分子のマイグレーションの経路など)については簡便な取り扱いで計算量を減らす手法を導入した。これにより、複雑な表面反応の反応経路地図を、ルーチンの作成できるようになった

③分子寿命(分子の耐久性)の予測技術の開発

ミリ秒以上形状を維持できる分子に対して、その寿命を計算することはこれまで不可能であった。そこで、人工力誘起反応法の探索領域を速度定数行列縮約法によって制限し、入力構造が崩壊する際に関与する経路のみを効率的に自動探索する手法を構築した。この計算では、ターゲットとなる分子の寿命は、出発構造の全ての崩壊経路のオーバーオール速度定数の和の逆数から計算される。このような系統的な分子寿命計算法は、世界初の技術である。