

原子・分子の自在配列と特性・機能
2022 年度採択研究代表者

2022 年度
年次報告書

田代 省平

東京大学 大学院理学系研究科
准教授

結晶内分子配列に基づくバイオリファイナリー

研究成果の概要

バイオマスからさまざまな化学製品などを製造するバイオリファイナリーにおいて、木質バイオマスの主成分であるセルロースから誘導されるフラン誘導体の触媒変換反応や分離手法の開発は中核的な位置を占めている。したがって、これらの分子変換および分離精製プロセスにおける固体材料との分子間相互作用を理解することは重要である。この点を明らかにするため、優れた分子認識能をもつ環状錯体集積型多孔性結晶 Metal-macrocycle framework (MMF) (S. Tashiro, M. Shionoya, *Acc. Chem. Res.* **2020**, *53*, 632)をフラン誘導体の認識場および観察場として活用することにより、フラン誘導体が形成する多様な分子間相互作用を網羅的に解析することを目的として実験を進めた。具体的には、さまざまなフラン誘導体をゲスト分子として MMF 細孔内に導入し、それらの吸着構造を単結晶 X 線回折測定によって解析することにより、フラン誘導体が細孔内で形成する多様な分子間相互作用を検出した。次に、これらの相互作用を各フラン誘導体の部位ごとに分類することにより、それぞれのフラン誘導体における網羅的相互作用マップを作成した。その結果、ホルミル基や水酸基などの極性側鎖のみならず、フラン環自体がさまざまな多点相互作用を形成することが分かり、これらのマイナーな相互作用が協働的に作用することもフラン誘導体の吸着において重要な役割を果たしていることが示唆された。本知見は、さまざまな多孔質材料におけるフラン誘導体の触媒・分離設計に対して重要な指針を与えるとともに、今後は得られた知見に基づいて MMF 細孔内でのフラン誘導体の変換反応を設計することも目指す。上記の研究成果に加えて、2022 年度は多孔性構造を多様化して触媒反応場としての可能性を広げることを目的として、MMF 結晶細孔の構造変換や異なる多孔質構造の設計についても研究を進めた。