

多配置理論における反応活性軌道の自動抽出手法

¹北大院総化, ²北大院理, ³北大L-Station, ⁴北大ICReDD

○海老澤 修一¹, 堤 拓朗^{2,3}, 武次 徹也^{2,4}

【研究背景】 GRRM^[1]をはじめとする反応経路自動探索手法の発展により, 起こり得る化学反応を自動的に算出することが可能となった。研究開発の効率化・迅速化が求められる中, 自動化の重要性は益々高まっている。データ科学は蓄積データを活用することで統計予測や因果関係の推定を図る手法として注目を集めている。近年では計算化学とデータ科学を組合せた研究も報告^[2]されており, 今後の進展が期待される。一方で, 計算化学の結果をデータ科学へ応用する上で次のような問題がある。

A) 計算化学は厳しい計算速度の制約を有しており, 統計的予測に十分な量のデータを十分な速度で生成することは必ずしも容易でない。

B) 不足するデータ量を補う上で, 対象に関する専門的知見がしばしば有用であるが, 人間による判断・処理は速度が遅く, 研究開発の効率化・迅速化の障害となる。

上記の問題 A に対しては, 計算化学の計算速度自体を高速化する必要がある。B に対しては, 専門的知見に基づく判断・処理自体を自動化することが必要になる。本研究では問題 B に焦点を当て, 従来人間が担ってきた専門的知見 (理論) に基づく判断・処理を自動処理としてシステムに組み込む試みの一環として, 反応経路に沿った反応活性な分子軌道の同定・抽出の自動化に取り組んだ。

Hartree-Fock, 密度汎関数理論に対しては既に natural reaction orbital (NRO) 法を開発しているが,^[3] 本研究では適用範囲を多配置理論や線形応答理論に拡張した (MC-NRO 法)。^[4]

【理論】 詳細は当日報告する。

【結果】 1,3-プロパジエンの[1,5]-シグマトロピー転位について, MC-NRO 法により自動抽出した反応活性な分子軌道ペアとそれらが特徴づける電子密度変化を示す (図 1)。計算レベルは CASSCF(8,8)/cc-pVTZ であり, 構造は遷移状態構造である。図 1 の分子軌道はいずれも活性空間内部の分子軌道である。電子密度変化をみると, 結合交替と対応する位置での電子密度の増減が見られ, 反応活性な分子軌道が適切に抽出されたことがわかる。一方で, 図 2 の有機電子論的な描像とは異なる形で電子移動が進行しているが, この点については当日議論する。当日は MC-NRO 法に基づく活性空間の改善についても報告する。

[1] S. Maeda, K. Ohno, and K. Morokuma, Phys. Chem. Chem. Phys. **15**, 3683 (2013).

[2] O. A. von Lilienfeld, K.-R. Müller, and A. Tkatchenko, Nat. Rev. Chem. **4**, 347 (2020).

[3] S. Ebisawa, M. Hasebe, T. Tsutsumi, T. Tsuneda, and T. Taketsugu, Phys. Chem. Chem. Phys. **24**, 3532 (2022).

[4] S. Ebisawa, T. Tsutsumi, and T. Taketsugu, J. Chem. Phys. **157**, 084118 (2022)

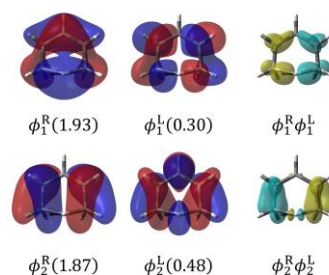


図 1 反応活性な分子軌道ペア (左・中央) と対応する電子密度変化 (右)。カッコ内の数値は占有数。電子密度変化は黄/水色の領域で増加/減少。

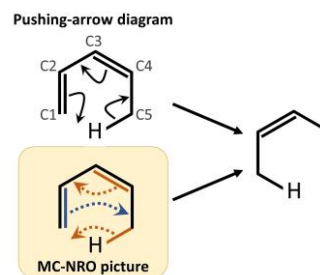


図 2 電子移動の有機電子論的な描像と MC-NRO 法に基づく描像との比較。