

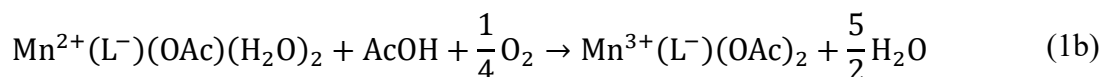
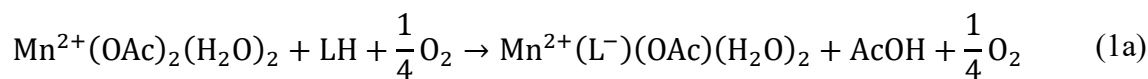
# 機械学習を用いるマンガン錯体の酸化状態の予測

<sup>1</sup>慶大院理工, <sup>2</sup>DIC株式会社

○山田 太郎<sup>1</sup>, 中野 宏明<sup>2</sup>, 稲垣 泰一<sup>1</sup>, 畑中 美穂<sup>1</sup>

**【序】**塗料の乾燥は、溶媒の揮発と含有アルキド樹脂の重合によって起こるとされており、塗料には重合を加速させるためにドライヤーと呼ばれる金属錯体が添加されている。マンガン(Mn)系ドライヤーの場合、Mn(II)錯体よりも Mn(III)錯体の方が高い活性を示すことが知られており<sup>[1]</sup>、Mn(II)石鹼を原料に用いてドライヤーを設計するためには Mn の酸化状態を制御する添加剤を加える必要がある。そこで本研究では、添加剤を加えることで生じる Mn(III)種の安定性を予測する機械学習モデルを構築し、高効率な添加剤の探索手法を提案する。

**【方法】**Mn(III)種の安定性は、金属石鹼のモデル錯体  $Mn^{2+}(OAc)_2(H_2O)_2$  と添加剤 LH からの反応エネルギーを用いて議論する。Mn(II)種は式(1a)の右辺の方が安定であったため、式(1b)の反応エネルギー $\Delta G$ で Mn(II)と Mn(III)の安定性の差を見積もった。



データ収集は、LH の母骨格と置換基の SMILES を用意し、組み合わせることで LH、Mn(II)錯体、Mn(III)錯体の SMILES を発生させた。その後、立体構造に変換し、DFT 法(B3LYP-D3/Def2-SVP)を用いて構造最適化を行うことで、 $\Delta G$  のデータを集めた。

LH の SMILES を用いて RDKit<sup>[2]</sup>ライブラリから得られる特徴量から、 $\Delta G$  を予測する機械学習モデルを構築することを目指した。しかし $\Delta G$  の計算には時間がかかり、多数のデータを集めにくいいため、Fig.1 のようにモデルを 2 段階に分けることで少数の $\Delta G$  データから予測モデルを構築した。機械学習①の説明変数には、添加剤や錯体の部分構造のモデル錯体から得られる 7 種類を用いた。機械学習②の説明変数には、RDKit 由来の 160 種類を用いた。機械学習①は線形回帰アルゴリズムを、機械学習②には Random Forest 回帰アルゴリズムを用いた。

**【結果・考察】**機械学習①の予測結果を Fig.2 に示す。検証用データに対する RMSE 値は 1.31 kcal/mol であり、高精度な予測モデルができた。回帰係数の絶対値が大きい特徴量は化学的直観と合致したものであった。次に機械学習②を構築したところ、7 種の目的変数全てについて精度よく予測することができた。

ここまで 2 段階での予測を行ってきたが、機械学習①での 170 データを用い、1 段階で RDKit の特徴量から $\Delta G$  の予測を行ったところ、機械学習①と同程度の精度で予測を行うことができた。しかしこの方法では、未検討の母骨格を持つ LH に対する予測が難しい可能性が高い。発表では、様々な LH に対する外挿性について議論する。

## 【参考文献】

[1] E. Bouwman and R. van Gorkum. *J Coat Technol Res.* **4**, 491 (2007).

[2] RDKit, "Open-source cheminformatics.": <<http://www.rdkit.org>>



Fig.1. Scheme of machine learning.

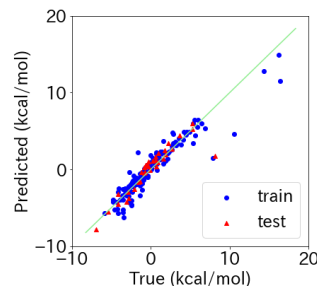


Fig.2. Prediction of reaction energies.