

機械学習を用いるパラジウム/ホスフィン触媒反応系の触媒能予測

¹慶大院理工, ²東京都立大院理, ³北大院理

○中谷 駿介¹, 荻原 陽平², JIANG Julong³, 稲垣 泰一¹, 畑中 美穂¹

【序】近年の多分野における触媒需要の増加に対して、従来の化学者の知識とそれに基づく実験に代わる方法として、機械学習を用いた幅広い触媒のスクリーニングが考えられる。これを実現するためには、触媒の数値情報(特徴量)を入力することで触媒の情報(収率や選択比など：目的変数)を出力するモデルの構築が不可欠である。しかし、幅広い触媒に対して共通して利用可能な数値表現が少ないため、類似構造を持つ触媒にのみ適用可能なモデルしか作れていない。そこで、遷移金属錯体触媒を用いる反応が、数種類の素反応の組み合わせであることに着目し、特徴量の一つとして素反応の活性化障壁を用いることを提案する。本研究では、Pd 触媒を用いる還元的分子変換反応(図 1)を対象とし、実験データ(収率や選択性)を予測するモデルを検証する。

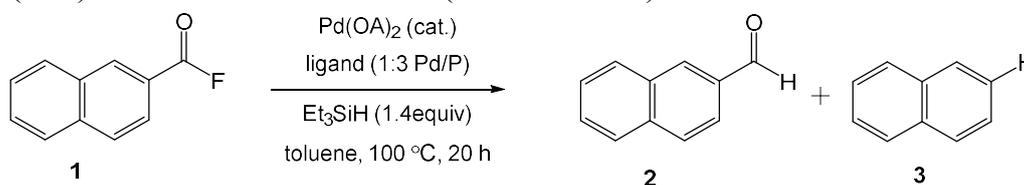


図 1 Pd 触媒を用いるフッ化アシルの還元的分子変換反応^[1]

【方法】遷移金属錯体の特徴量として広く用いられているものに、金属まわりのかさ高さを表す%*V*_{Bur}と、電子状態の特徴を表す量である HOMO 準位、LUMO 準位、双極子モーメント、Pd の Mulliken 電荷がある。これらを特徴量セット①と呼ぶ。特徴量セット①に素反応の活性化障壁を加えたものを特徴量セット②と呼ぶ。本研究では、Pd 錯体と H₂, CH₃I, C₆H₅I の酸化的付加と還元的脱離、酸化的付加体と CO の 1,1-挿入とα脱離、C₂H₄ の 1,2-挿入とβ脱離、CH₃MgI のトランスメタル化 および B(CH₃)₃ のσ結合メタセシスをモデル素反応として活性化障壁を計算した。なお、活性化障壁の計算には人工力誘起反応法(AFIR)法^[2]と LUP 法を用いた。AFIR 法および LUP 法の計算には半経験的量子化学計算(xTB2)法を、構造最適化とエネルギー計算には密度汎関数法(B3LYP-D3/def2-SVP)を用いた。また、我々の予備的な検討から、本反応の生成物選択性に関係があることが示唆されている反応物 1 に対する配位エネルギー(Δ*E*_{coord})を加えた特徴量セット③も作成した。

以上の3種の特徴量セットを説明変数に、生成物 2 と 3 の収率の和および過剰率を目的変数に用いた。ただし、収率と過剰率はシグモイド関数によって変換した値を利用した。機械学習モデルには、PLS 回帰、LASSO 回帰、データ分類と LASSO 回帰を同時に実行する Linear Tree 回帰、ガウス過程(GP)回帰の4種を用いた。

【結果・考察】生成物の収率の和を目的変数とする機械学習モデルのスコア(*R*² 値)を表 1 に示す。特徴量セット①と②を比較すると、いずれの回帰モデルにおいても、特徴量セット②を用いた方が予測精度が高かった。このことから、特徴量セット②は、本反応に限らず、様々な遷移金属錯体触媒反応の触媒能予測に有用な特徴量であると考えられる。

表 1.3 種類の特徴量セットに対する各学習モデルでの *R*² 値

特徴量 \ モデル	PLS	LASSO	Linear Tree	GP
Set ①	0.64	0.61	0.64	0.63
Set ②	0.75	0.66	0.68	0.69
Set ③	0.86	0.75	0.82	0.80

[1] Y. Ogiwara, Y. Sakurai, H. Hattori, *et al.*, *Org. Lett.* **2018**, *20*, 4204.

[2] S. Maeda, K. Ohno, K. Morokuma, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2013**, *15*, 3683.