

Title	遷移状態のデータベース化による触媒能予測システムの構築
Sub Title	Prediction of the catalytic ability based on the transition state database
Author	畑中, 美穂(Hatanaka, Miho)
Publisher	慶應義塾大学
Publication year	2021
Jtitle	学事振興資金研究成果実績報告書 (2020. )
JaLC DOI	
Abstract	<p>反応経路探索技術の一つである人工力誘起(AFIR)法により、様々な化学反応の過程をほぼ自動で追跡することが可能になってきた。しかし、複雑な触媒反応系の場合、一種類の触媒系の反応経路の探索だけでも、膨大な計算コスト、時間がかかるため、触媒のスクリーニングのために、各触媒について反応経路探索を行うことは現実的ではないという問題があった。これに対し、触媒の情報を入力することで触媒能を出力するシステムが構築できれば、未知の触媒に対するコンピュータ内でのハイスループットスクリーニングが可能になる。このようなシステムの構築には、触媒をいかに数値で表現するか(特徴量)が鍵となる。しかし、触媒の構造・骨格に依存せずに汎用的に利用できる特徴量は限られていた。</p> <p>そこで、本研究では、金属錯体触媒反応に限られた種類の素反応の組み合わせで説明できることに着目し、素反応の経路上の構造・エネルギーの情報を触媒の記述子に用いることを提案した。素反応の構造・エネルギーの情報を記述子に用いる利点は二つある。一つ目は、触媒の骨格に依存せず定義できるため、汎用的に利用できること。二つ目は、活性化障壁を下げるという触媒の役割を直接的に数値化できることである。実際に、AFIR法を駆使して素反応の反応経路を求め、経路上のエネルギーや構造パラメタの情報をデータベース化し、さらに、パラジウム錯体を触媒とする複数種類の反応に対して、データベース化した特徴量と触媒能(収率・生成物選択性)の実験値の間の相関モデルをPLS回帰を用いて構築した。その結果、予測精度の高い相関モデルを構築できる反応とそうでない反応に分かれた。今後はこの差が何に起因するか解析することで、より汎用的な特徴量の開発につなげていく予定である。</p> <p>The artificial force induced reaction (AFIR) method, which is one of the automated reaction path search methods, have enabled us to explore the reaction routes automatically. In the case of complicated catalytic reaction systems, however, screening of catalysts based on the reaction route search is too demanding because of its high computational cost. On the other hands, if we can build a model which outputs the catalytic ability from the data of catalyst, computational high-throughput screening of catalysts becomes possible. The key to construct such a correlation model is the way to describe the catalyst numerically (so-called features). To develop better features of catalysts, we proposed a new strategy that the data of structure and energy along the elementary reaction pathways is used for the feature of metal complex catalysts. There are two advantages of this strategy: one is the applicability for various catalysts and another is that our features, especially the energy of the transition state, represent the ability of the catalyst directly. In fact, we gathered the data of elementary reaction pathways using the AFIR method, and applied them to construct correlation models for some palladium-catalyzed reactions. As a results, some of the correlation model had high predictivity, whilst others did not have high correlation. Thus, we plan to analyze the origin of this problem and lead to the development of better features.</p>
Notes	
Genre	Research Paper
URL	<a href="https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=2020000008-20200222">https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=2020000008-20200222</a>

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the Keio Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

研究代表者	所属	理工学部	職名	准教授	補助額	1,000 (特A)千円
	氏名	畑中 美穂	氏名 (英語)	Miho HATANAKA		
研究課題 (日本語)						
遷移状態のデータベース化による触媒能予測システムの構築						
研究課題 (英訳)						
Prediction of the catalytic ability based on the transition state database						
1. 研究成果実績の概要						
<p>反応経路探索技術の一つである人工力誘起(AFIR)法により、様々な化学反応の過程をほぼ自動で追跡することが可能になってきた。しかし、複雑な触媒反応系の場合、一種類の触媒系の反応経路の探索だけでも、膨大な計算コスト、時間がかかるため、触媒のスクリーニングのために、各触媒について反応経路探索を行うことは現実的ではないという問題があった。これに対し、触媒の情報を入力することで触媒能を出力するシステムが構築できれば、未知の触媒に対するコンピュータ内でのハイスループットスクリーニングが可能になる。このようなシステムの構築には、触媒をいかに数値で表現するか(特徴量)が鍵となる。しかし、触媒の構造・骨格に依存せずに汎用的に利用できる特徴量は限られていた。</p> <p>そこで、本研究では、金属錯体触媒反応に限られた種類の素反応の組み合わせで説明できることに着目し、素反応の経路上の構造・エネルギーの情報を触媒の記述子に用いることを提案した。素反応の構造・エネルギーの情報を記述子に用いる利点は二つある。一つ目は、触媒の骨格に依存せず定義できるため、汎用的に利用できること。二つ目は、活性化障壁を下げるという触媒の役割を直接的に数値化できることである。実際に、AFIR 法を駆使して素反応の反応経路を求め、経路上のエネルギーや構造/パラメタの情報をデータベース化し、さらに、パラジウム錯体を触媒とする複数種類の反応に対して、データベース化した特徴量と触媒能(収率・生成物選択性)の実験値の間の相関モデルを PLS 回帰を用いて構築した。その結果、予測精度の高い相関モデルを構築できる反応とそうでない反応に分かれた。今後はこの差が何に起因するか解析することで、より汎用的な特徴量の開発につなげていく予定である。</p>						
2. 研究成果実績の概要 (英訳)						
<p>The artificial force induced reaction (AFIR) method, which is one of the automated reaction path search methods, have enabled us to explore the reaction routes automatically. In the case of complicated catalytic reaction systems, however, screening of catalysts based on the reaction route search is too demanding because of its high computational cost. On the other hands, if we can build a model which outputs the catalytic ability from the data of catalyst, computational high-throughput screening of catalysts becomes possible. The key to construct such a correlation model is the way to describe the catalyst numerically (so-called features). To develop better features of catalysts, we proposed a new strategy that the data of structure and energy along the elementary reaction pathways is used for the feature of metal complex catalysts. There are two advantages of this strategy: one is the applicability for various catalysts and another is that our features, especially the energy of the transition state, represent the ability of the catalyst directly. In fact, we gathered the data of elementary reaction pathways using the AFIR method, and applied them to construct correlation models for some palladium-catalyzed reactions. As a results, some of the correlation model had high predictivity, whilst others did not have high correlation. Thus, we plan to analyze the origin of this problem and lead to the development of better features.</p>						
3. 本研究課題に関する発表						
発表者氏名 (著者・講演者)	発表課題名 (著書名・演題)	発表学術誌名 (著書発行所・講演学会)	学術誌発行年月 (著書発行年月・講演年月)			
Takayoshi Yoshimura, Maneeporn Puripat, Vudhichai Parasuk, Miho Hatanaka	Stereoselectivity of the Biginelli Reaction Catalyzed by Chiral Primary Amine: A Computational Study	Heterocycles, Vol. 103	2021 年 3 月			
畑中 美穂	反応経路のデータベースと機械学 習を用いた触媒推薦システムの構 築	日本化学会第 101 春季年会(2021)	2021 年 3 月			
畑中 美穂	反応経路自動探索を用いる触媒反 応の理論的研究－機構解明・触媒 設計を目指して－	日本コンピュータ化学会 2020 秋季 年会	2020 年 11 月			