

機械学習を活用した新規 MOF の合成研究

(関西学院大理) ○田中 大輔¹

Machine learning-assisted synthesis of novel metal-organic frameworks (¹*School of Science, Kwansei Gakuin University*) ○Daisuke Tanaka¹

Metal-Organic Frameworks (MOFs) exhibit promising functionalities by utilizing the framework structures. Because MOFs can form many crystal polymorphisms, it is difficult to predict synthesis condition to realize desired structures. Mechanism of crystallization process of MOFs is not fully understood, and time-consuming exploration has been required to optimize the synthesis conditions. Here, we focus on machine learning techniques to improve the accuracy of the prediction for the synthesis conditions. In this work, we explored the synthesis conditions of novel MOFs using high throughput screening systems and machine learning technique.

Keywords : *Metal-Organic Frameworks, Machine Learning High throughput Screening Synthesis*

金属イオンと架橋配位子が結晶性のフレームワークを形成する物質は、金属-有機構造体 (MOF) の名前で広く認知され、新しい吸着材料として世界中で近年活発に研究がなされている。MOF の特徴の一つに、金属イオンと架橋配位子の組み合わせを変えることで、多様な新材料を自在に設計可能になる点あげられる。しかしながら、これまでに報告が無い金属と配位子の組み合わせで、全く新規の MOF を合成する実際の研究で、望み通りの結晶構造を有する MOF が得られる可能性は、一般的に高くはない。MOF の合成では、様々な分子間相互作用の組み合わせの微妙なバランスで勝手に分子の配列が決まり、研究者が当初予想した構造とは全く異なる結晶構造が形成されてしまうことがしばしば起こる。全く新規の MOF の結晶構造をデザインして、目的とするフレームワークを合成するには、依然として地道な結晶化条件の探索が必要である。ここで言う結晶化条件の探索とは、溶媒の種類や溶液の濃度、反応時間や反応温度などの各種パラメータを地道にスクリーニングしていくことを意味しており、研究者の勘と経験だけに基づいた作業の積み重ねに他ならない。一方で、合成が難しいと考えられている金属イオンや配位子の組み合わせでは、まだまだ未開拓の MOF が手つかずの状態が存在しており、さらなる合成手法の革新が望まれる。

以上のような背景から、新規 MOF の合成条件探索を効率化するための新たなツールの開発は強いインパクトが期待できる。機械学習はこのような現状を打破する優れた手法になりうると期待できるが、残念ながら全く新規の MOF の合成に機械学習を利用した研究例は限定的であった。この理由の一つとして、機械学習は一般に内挿を得意とするが、新規 MOF の合成条件探索では、これまでとは異なる全く新しい合成条件を試す必要があるため、本質的に外挿を伴うという点あげられる。また、新規 MOF の合成を数値化することが難しいので、合成条件探索の問題を回帰の問題として取り扱うことが難しい点も、理由に挙げることができる。機械学習を新規 MOF の

合成条件探索に活用するには、本質的な「相性の悪さ」をどのように克服するかが課題となっている。

我々は新規 MOF の合成条件探索を分類の問題として取り扱い、これまで目の目を見なかった失敗実験から有用な情報を抽出するためのツールとして機械学習を活用することを提案した¹⁻³⁾。例えば、図 1(a)に示す金属イオンと配位子の組み合わせで MOF の合成を試みた際、得られた粉末の回折パターンを決定着学習により分類し、選択的な合成の支配因子を抽出することに成功した (図 2(b))。発表では、これらの解析の詳細と、機械学習に基づく解析の有用性について講演する予定である。

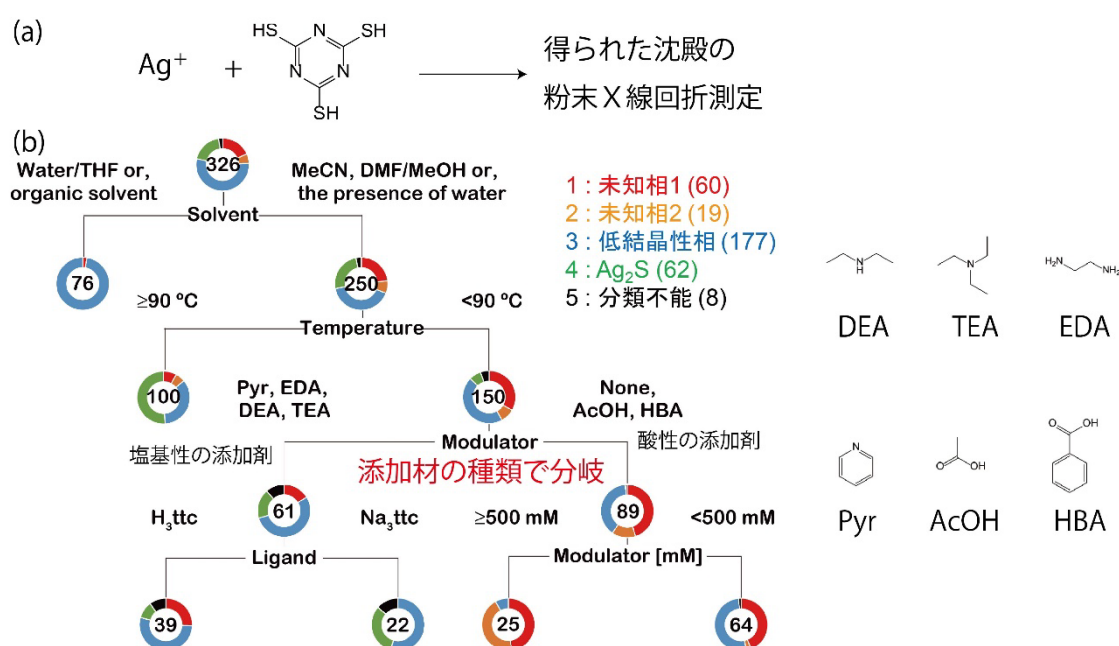


図 1. (a) 用いた金属と配位子の組み合わせ。(b) 326 の合成条件データベースの決定木による解析結果。

- Machine-Learning-Assisted Selective Synthesis of Semiconductive Silver Thiolate Coordination Polymer with Segregated Paths for Holes and Electrons, T. Wakiya, Y. Kamakura, H. Shibahara, K. Ogasawara, A. Saeki, R. Nishikubo, A. Inokuchi, H. Yoshikawa, D. Tanaka*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2021**, 60, 23217.
- Failure-Experiment-Supported Optimization of Poorly Reproducible Synthetic Conditions for Novel Lanthanide Metal-Organic Frameworks with Two-Dimensional Secondary Building Units, Y. Kitamura, E. Terado, Z. Zhang, H. Yoshikawa, T. Inose, H. Uji-i, M. Tanimizu, A. Inokuchi, Y. Kamakura, D. Tanaka*, *Chem. Eur. J.* **2021**, 27, 16347.
- Data-Driven Efficient Synthetic Exploration of Anionic Lanthanide-Based Metal-Organic Frameworks, Y. Kitamura, Y. Nakamura, K. Sugimoto, H. Yoshikawa D. Tanaka *, *Chem. Commun.* **2022**, 58, 11426-11429.