

「国家課題対応型研究開発推進事業」

原子カシステム研究開発事業 基盤チーム型（若手）

MA抽出のためのフッ素系スーパー溶媒の探査

東京科学大学 総合研究院 ゼロカーボンエネルギー研究所

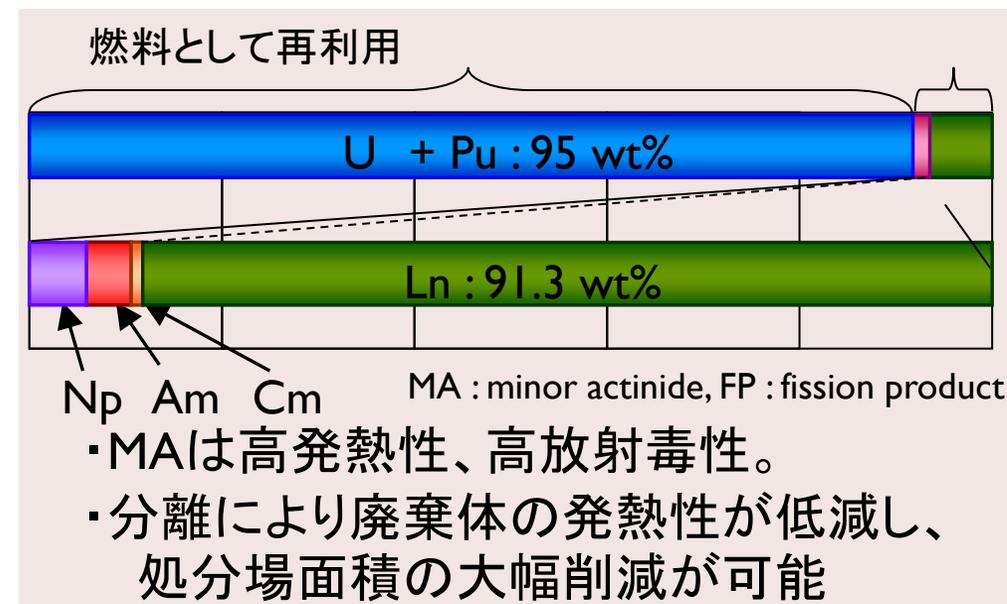
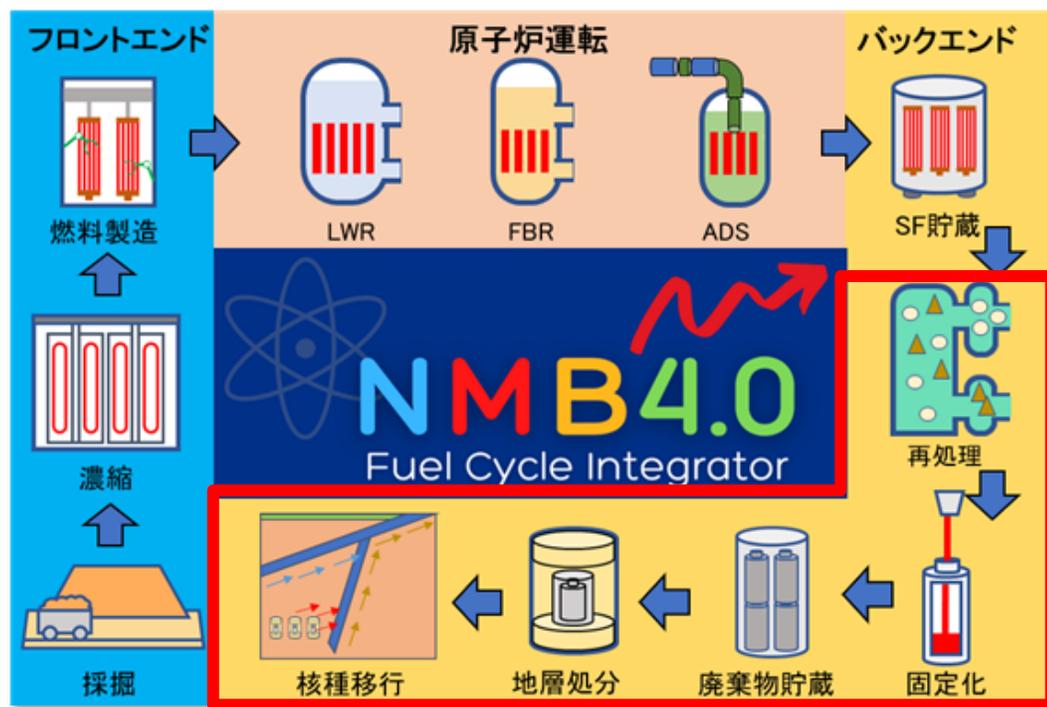
福島復興再生研究ユニット(兼務)

環境社会理工学院 融合理工学系

原子核工学コース、物質・情報卓越コース

中瀬正彦 (Ph.D, 准教授)

- ・2050年までのゼロカーボン社会実現に向け、原子力は鍵となる技術である。
- ・革新炉の研究開発が進展しているが、バックエンド技術の開発も加速が必要。
- ・使用済み核燃料の高燃焼度化、使用済みMOX燃料、マルチサイクルへの対応が必要。
 - 次世代再処理へのMA分離プロセスの導入が検討されている。
- ・廃棄物・処分場負荷を低減した合理的な核燃料サイクル構築が必要。



東工大、JAEAで開発した核燃料サイクルシミュレーションコードNMB4.0 **マイナーアクチノイド(MA)分離プロセスの構築がカギ**

MA分離の重要性と分離手法

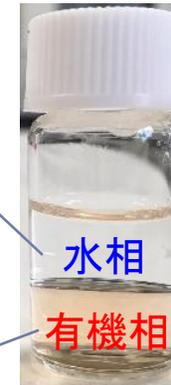
MA分離の現状と課題

- ・化学的性質の類似した希土類元素(RE)とMAの分離は困難、抽出系の高度化が必要。
- ・既往のMA分離用抽出剤は、HLW相当の高硝酸濃度では分離性能が不十分。
- ・n-ドデカンは高い引火点だが、MA分離用抽出剤は溶けにくい場合が多い。
- ・第三相といったプロセス上必ず避けるべき事象も発生することがある。

57 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu
89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr

- ・3価のMAとREは相互分離が困難。
- ・アクチノイドの5軌道がランタノイドの4軌道より若干広がりを持つため、アクチノイドはランタノイドより若干ソフト性が高い。
- ・ソフトドナーは高酸濃度での利用が難しい。

金属イオン
硝酸イオン



物質クラス (商品クラス)	HFC (Vertrel)	HFO (Opteon)	
	製品名	SF33	SF10
構造式			
b.p. /°C	55	33	110
熱的安定性	優	可	可
蒸発潜熱 kJ/kg	28.4	166	35.2
誘電率	1.3	—	—
水の溶解/ppm	2.2	—	—
水への溶解/ppm	140	(7-8)x10 ²	—
ODP (オゾン層破壊)	0	0	0
GWP (温室効果)	1650	2.0	<10

- ・フッ素系溶媒 HFC (Hydro-fluorocarbon) や HFO (Hydrofluoroolefin) は **引火性、人体毒性、オゾン層破壊係数ゼロの固有安全性を有し**、希釈剤としての実用性が示されている*。

*T. Yamamura, *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., 47 (2010) 515.

- ・構造調整で**大気寿命低減、GWP低減が可能**
- ・MA分離抽出剤の**低溶解性、第三相形成の課題を解決**
- ・溶媒により分配比や分離係数が変化(**溶媒効果**)

機械学習を用いたMA抽出系探索スキームの開発と、探査

MA分離研究における機械学習

- ①初めの教師データを蓄積するところから高コスト
- ②外挿的な推算をしたい (代理物質の知見をりたい)
- ②既報文献の条件が若干ずれたデータも使いたい

人間の知見を使いたい



従来の再処理・MA分離研究

・高レベル廃液での結果とのズレ

多数の実験が可能
低コスト

データベース、モデル化



効率的な
パラメータ最適化

データ同化
性能が悪かったデータ
条件がずれたデータ

本研究のアプローチ

人間介在型機械学習、転移学習

実験計画法、応答局面法、ベイズ推論
推算；溶解度、抽出率、耐放射線性、
第三相形成 etc

- ✓ 実験と解析の両方を考慮した研究プランニング
 - ✓ 機械学習を援用した研究開発の加速
- 逆設計問題のアプローチが課題

多数の実験ができない
高コスト

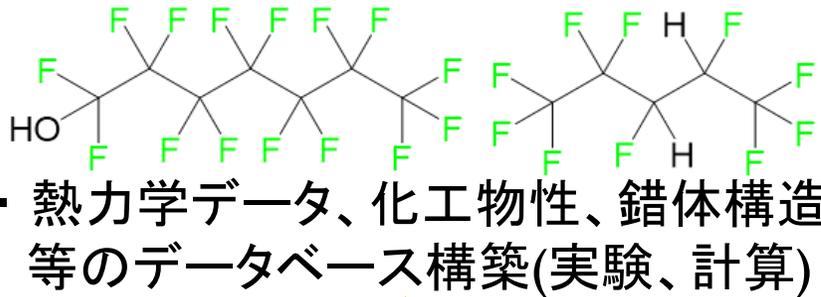
夾雑元素
高放射線量
不溶解残渣
組成ばらつき

ワークフロー化
ローコード
ラボ内データ管理

フッ素系スーパー溶媒の探査

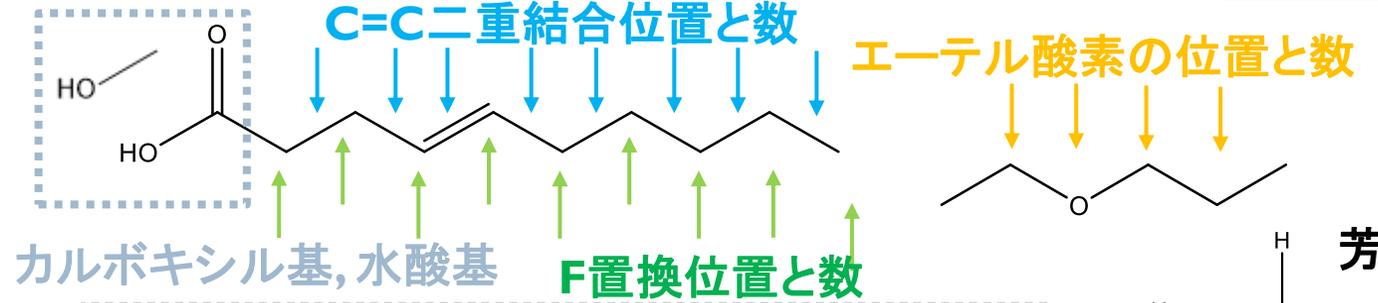
実験検討

市販のフッ素系溶媒



計算検討

仮想的なフッ素溶媒分子群



- ・置換位置の違いにより膨大な数の異性体が存在
- ・酸や溶媒を考慮した計算が必要となるため、多くの条件での検討、膨大なパラサーベイが必要
- 推算した化工物性値を反映させた計算

- ・物性推算式、モデル構築・回帰分析による分配比予測
- ・フッ素系スーパー溶媒候補の絞り込み

MIアプローチ

- ・多段式ミキサセトラによる連続抽出試験
- ・分離プロセス解析

TRLの向上

工学適用、社会実装

金属イオンと抽出剤との相互作用(第一原理計算)

溶媒効果

抽出錯体、抽出剤同士の相互作用; 第三相形成までのスケールアップ

外圏

溶媒構造と溶媒物性、抽出挙動との相関

希薄系、界面での錯形成挙動→大規模計算

テーマ1 熱力学データの取得(東工大)

- ①抽出剤の合成と溶媒の調整 ②溶媒抽出データの取得 ③放射線影響解明

テーマ2 化工物性データの取得(京大、東工大)

- ①化工物性データの取得

テーマ3 計算検討(東工大)

- ①理論計算による抽出支配因子の解析
②大規模第一原理MD計算による現実系の模擬と実験・理論計算へのフィードバック

テーマ4 錯体の構造解析(原子力機構、京大、東工大)

- ①単結晶X線構造解析 ②放射光XAFS ③溶液散乱実験

テーマ5 連続多段抽出と分離プロセス解析(東工大)

- ①多段式ミキサセトラの流動試験 ②多段式ミキサセトラを用いた連続抽出試験とプロセス解析

テーマ6 工学適用に向けた課題検討(三菱重工業)

- ①プロセス要件の検討・課題整理

- ✓ 機械学習
- ✓ 溶媒探査
- ✓ 再処理

- ✓ メカニズム

- ✓ 工学適用性
- ✓ 社会実装

①溶媒探査、②メカニズム研究、③工学適用性向上 の三つを達成！
→ サブテーマの関連により最終的に至った結論を明瞭に示す。

開発した溶媒分子候補の探査スキーム

① 実験とデータ操作



実験値
%E, D, SF
化工物性値

計算値
DFT, MD, COSMO
エネルギー物理量
構造パラメータ/
データベース;
QM9 etc...

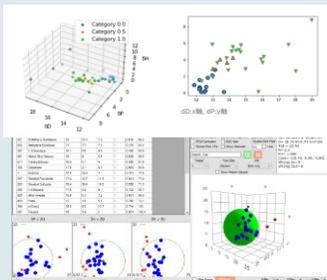
SMILES	Source	Target	%E Eu	%E An
CC1=CC=CC=C1	1	1	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C	2	2	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C	3	3	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C(C)C	4	4	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C(C)C(C)C	5	5	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C(C)C(C)C(C)C	6	6	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C	7	7	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C	8	8	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C	9	9	0.0	0.0
CC1=CC=CC=C1C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C(C)C	10	10	0.0	0.0

ターゲットとソースの
データベース

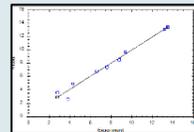
② 候補分子構造の生成 (HSPをベースに)

Solubility prediction

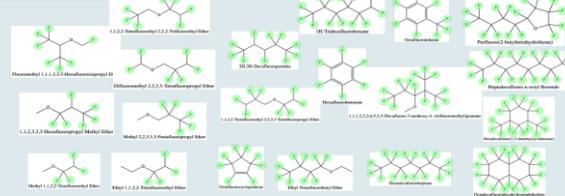
HSP DB



%E prediction



Virtual Synthesis (As concept)



Solvent candidate List

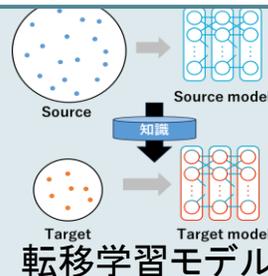
Human-in-the-loop

Decision by experimentalist

Data Completion
Data manipulation
Update models
Start with limited info

Performance
Estimation of
Solvent Candidates

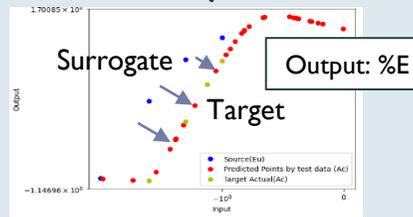
③ 転移学習 (HSP to %E with a small target dataset)



%E Eu

%E An

少ない手数でMAの抽出率を推算



④ 候補の絞り込みとランキング

実験による検証

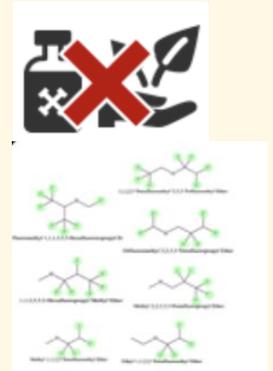
Ranking by difference of %E_{Am} and %E_{Eu}

Larger difference

SMILES
FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F
FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F
FC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)I
FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F
FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F

Filtration

<Criteria>
MA ↑ Ln ↓
Cost, Accessibility,
Ease of Synthesis, Handling
Toxicity, Regulation,
Environmental Burden,
Pysico-chemical prop.



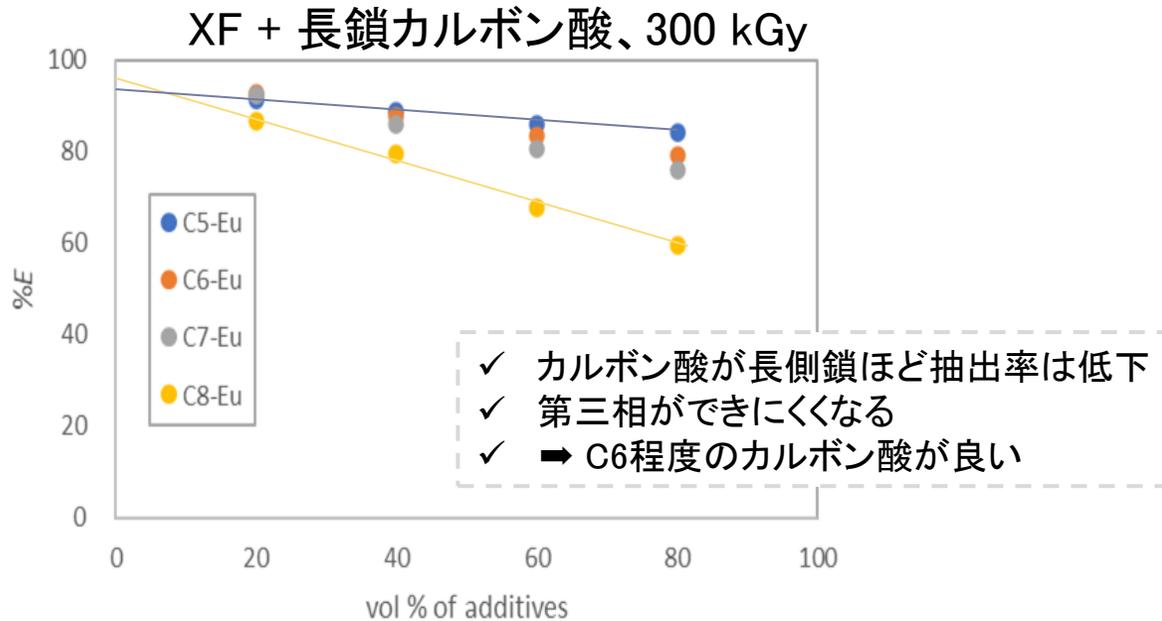
実験による検証と妥当性確認を
最小限の実験努力で実施

アプリ化; AACE

- ✓ サイクルの加速
- ✓ HITL導入の容易さ

探査結果;スーパー溶媒の候補

- ✓ スーパー溶媒の候補として、①単一フッ素系溶媒、②混合溶媒を検討した。
 - フッ素系溶媒と長鎖カルボン酸の混合溶媒; 抽出剤の溶解性が高く、チューニングしやすい。放射線の影響を緩和、第三相の形成が抑えられる。
 - 開発したスキームで混合溶媒の探査も可能

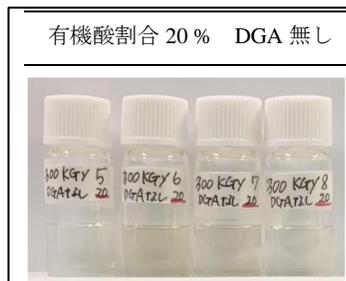


単一溶媒リスト

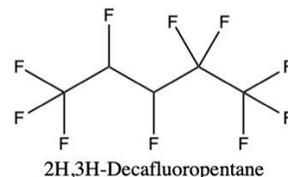
SMILES
<chem>FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(F)=C(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)Br</chem>
<chem>FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>F/C(=C(/F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(=C(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>
<chem>FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F</chem>

混合溶媒リスト

SMILES
<chem>CCOC(=O)C=CCl=CC=CC=Cl</chem>
<chem>Cl=CC=C(C(=Cl)CCl)[N+](=O)[O-]</chem>
<chem>CC(=O)NlCCCCCl=O</chem>
<chem>C(CC(F)F)CF</chem>
<chem>CCCCCCCCCCCC#N</chem>
<chem>CCCCCCCCCCCC#N</chem>
<chem>CC(CCl)(Cl)Cl</chem>
<chem>Cl=CC(=C(C(=Cl)Cl)C=NN=C(N)N)Cl</chem>
<chem>CCC(CCl)Cl</chem>
<chem>CC(C)C(=O)C(C)C</chem>
<chem>Cl=CC(=CC(=Cl)Br)[N+](=O)[O-]</chem>
<chem>Cl=CC(=CC(=Cl)[N+](=O)[O-])C(F)(F)F</chem>
<chem>CCC(C)(C(=O)CCl)NC(=O)Cl=CC(=C(C(=Cl)Cl)C)Cl</chem>
<chem>CCl=CC(=O)C(=CCl=O)C(C)C</chem>
<chem>C(C(=CCl)Cl)Cl</chem>
<chem>CC(C)(C)C(=O)C(NlC=NC=Nl)OC2=CC=C(C=C2)Cl</chem>
<chem>CC(C(CCl)Cl)Cl</chem>
<chem>CNlC(=NC(=O)N(Cl=O)C2CCCC2)N(C)C</chem>
<chem>ClC2ClC(=O)OC3=CC=CC=C23</chem>



ガンマ線照射後の相状態も良好

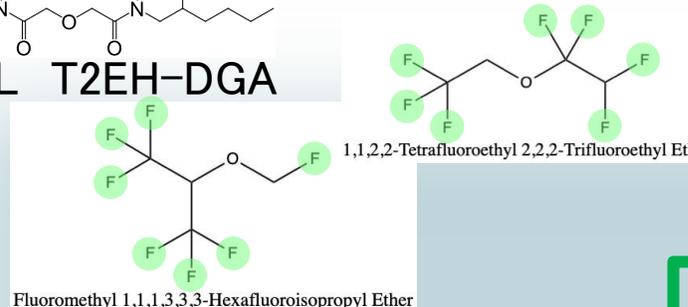
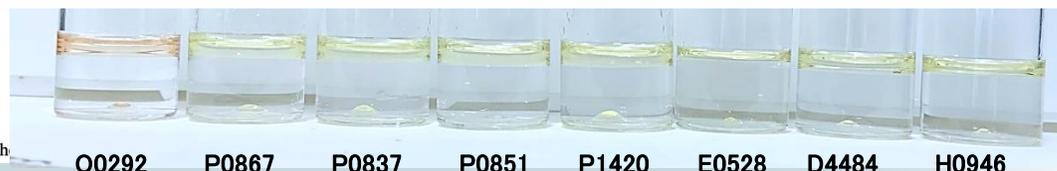


ベースのフッ素系溶媒の例

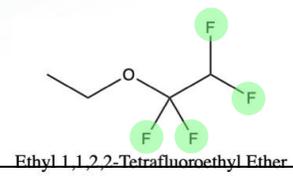
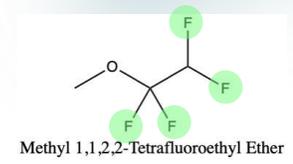
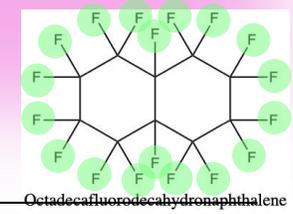
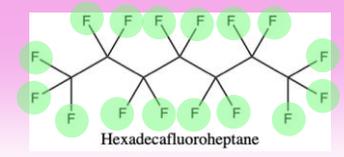
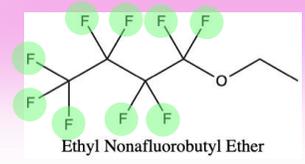
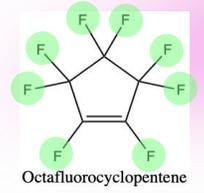
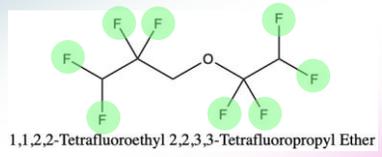
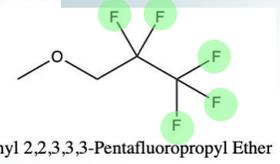
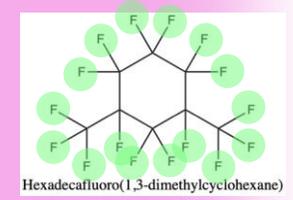
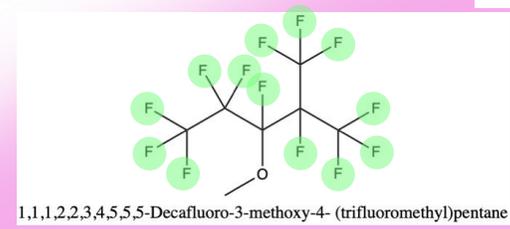
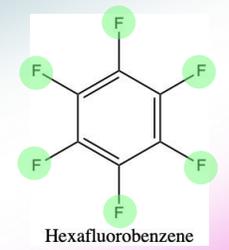
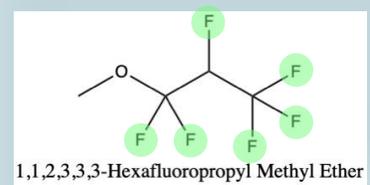
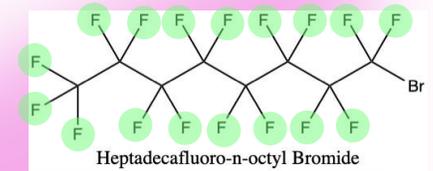
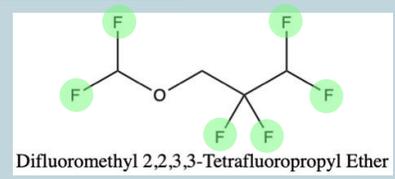
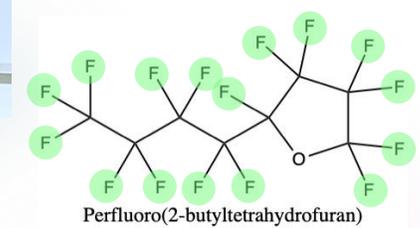
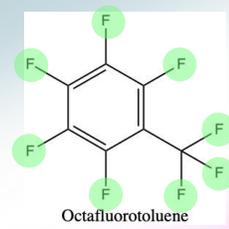
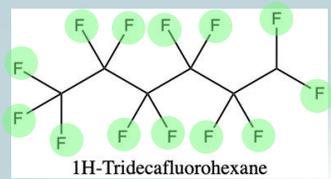
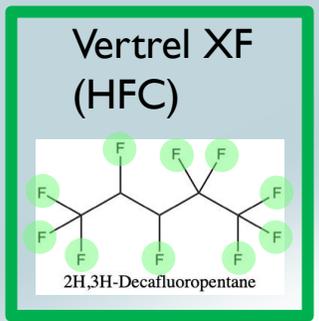
- 完全にフッ素化せず、水素を若干残している
- 購入可能
- 東工大Co-60照射施設を用いた放射化学研究も展開

溶解性試験

100mmol/L T2EH-DGA



リファレンス



C3

C4

C5

C6

C7

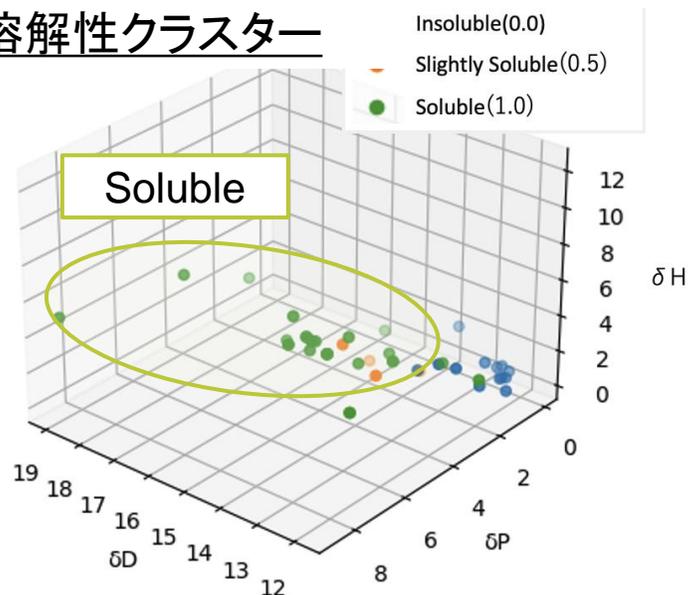
C8~

- ・分子サイズの小さいフッ素系溶媒の方が溶解性が高い
- ・任意の構造の溶解性を予測したい⇒構造の特徴量との相関を見出す。

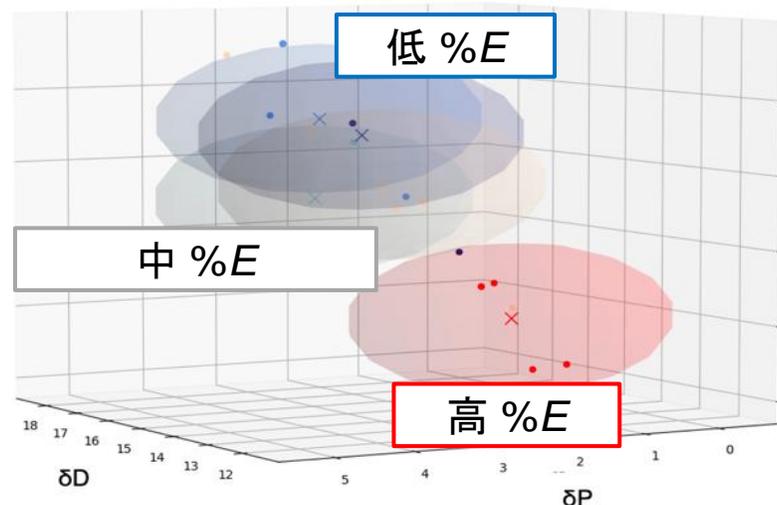
HSPを用いた分子構造からの溶解性と抽出率の推算

- ・ハンセン溶解度パラメータ(HSP)は、 δD (分散力)、 δP (極性力)、 δH (水素結合)として定義される化工物性である。3D(HSP)空間でプロットでき、2つの化合物はプロットが近いほど化学的性質が類似しているとみなせる。
- ・分子のHSPはグループ寄与法によってSMILESから計算できる。混合物のHSP値は重量平均で表される。

溶解性クラスター

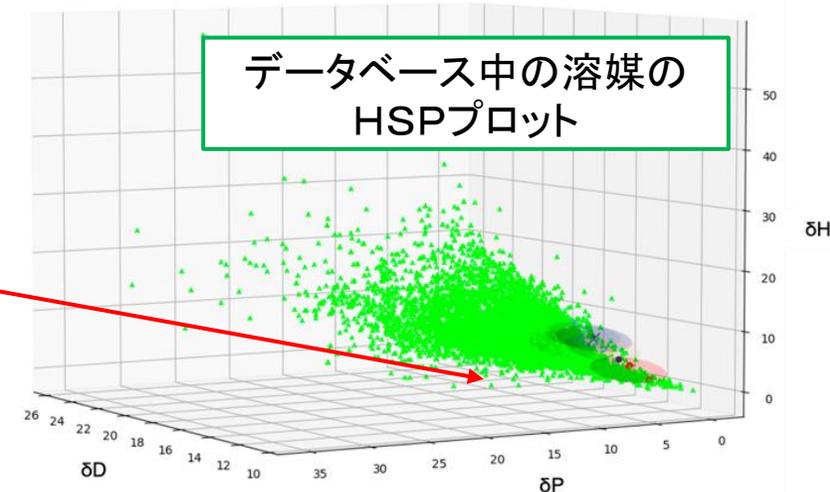


抽出率クラスター



Applying typical k-means clustering

HSPデータベースの活用



✓ HSP空間上にプロットし、分類

- 溶解性: 1 → 緑
- 中間体: 0.5 → オレンジ
- 不溶性: 0 → 青

✓ %Eのクラスタリング: 高、中、低の中心からのユークリッド距離は逆設計に使用

- ✓ 少ない教師データからAm抽出率を推算したい。
- ✓ 如何に逆設計を行う？

✓ 候補分子の探索方法;

- ① HSPデータベース
- ② SMILESからHSP値を推算

- ✓ 分子を絞り込んだのちに、%Eを推算
- ✓ %E; Amは高く、Euは低いものを選ぶ

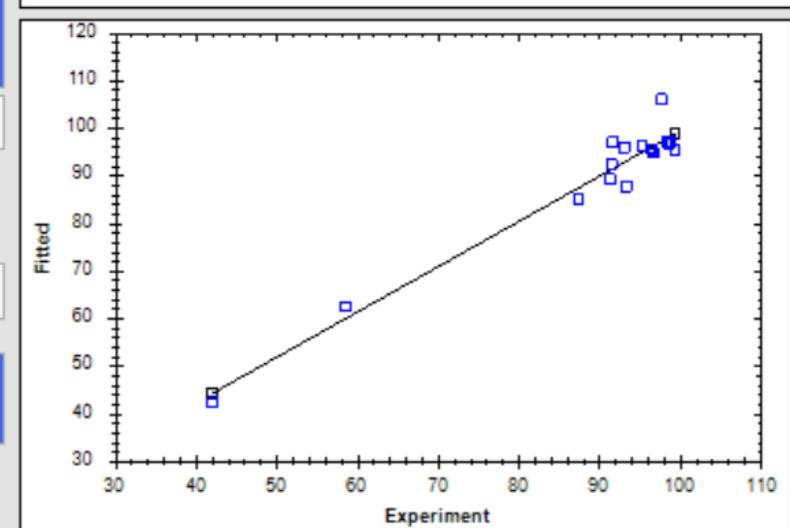
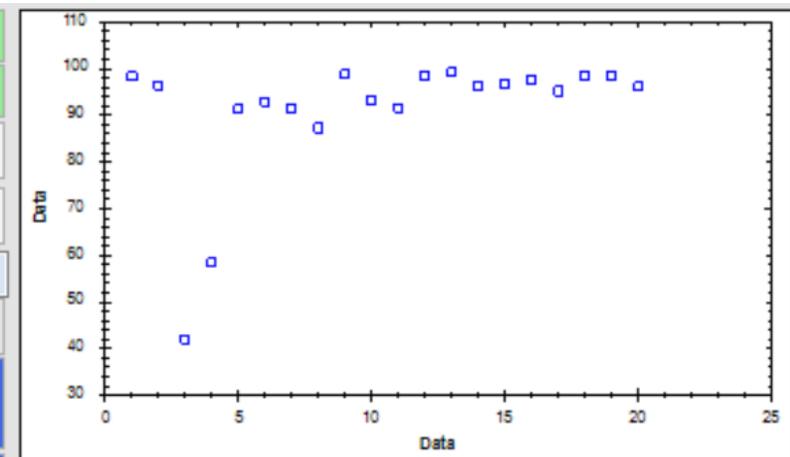
重回帰による抽出率の推算(Eu)

Eu %E (実験値)

生成された因子

Chemical	SMILES	Data	δD	δP	δH	δ_{HDon}	δ_{HAcc}	MWt	Density	MVol	A
Selection		1	0	0	0	0	0	0	0	1	0
n-dodecane	CCCCCCCCCCCC	98.3	15.75	0.1	0.1	0.1	0.1	170.3	0.747	228	28
1,1,1,2,2,3,4,5,5,5-decaf...	FC(C(F)C(F)(F)C(F)F)C(F)(F)F	96.5	12.3	1.39	1.08	0.8	0.2	252.1	1.51	166.9	19
Chloroform	ClC(Cl)Cl	42.0	17.58	5.8	6.27	5.4	3.3	119.4	1.582	75.5	94
Toluene	CC1=CC=CC=C1	58.4	18.02	2.58	3.3	0.4	3.1	92.1	0.876	105.2	12
Nitrobenzene	[O-][N+](=O)C1=CC=CC=C1	91.3	18.98	8.76	5.06	2.3	4.1	123.1	1.162	106	13
(2E)-1,1,1,4,4,4-hexafl...	FC(F)(F)C(F)C(F)C(F)F	93	13.91	2.74	2.37	0.5	2	164.1	1.353	121.2	14
1-Octanol	CCCCCCCCO	91.5	16.07	4.35	12.32	8.1	7.4	130.2	0.82	158.8	21
(1E)-1-chloro-2,3,3-t...	FC(F)C(F)C(F)C(F)Cl	87.3	15.91	4.04	2.53	2.8	1.3	130.5	1.344	97.1	11
1,1,2,2-tetrafluoro-1-(...	FC(F)C(F)(F)OCC(F)(F)F	98.8	14.13	4.99	3.97	2.4	2.8	200.1	1.477	135.5	16
hexafluorobenzene	FC1=C(F)C(F)=C(F)C(F)=C1F	93.3	16	3.64	3.51	0.1	3.5	186.1	1.634	113.9	14

Help
Params
N=20
Data
QSAR
Normalise
Predict



C:\Users\Masahiko Nakase\Desktop\HSPiP...2022

Eu %E (予測) SP for Distance: δD 12.0 δP 5.0 δH 5.0

Chemical	SMILES	Data	δD	δP	δH	δ_{HDon}	δ_{HAcc}	MWt	Density
hexane (C6)	CCCCCC	92.59	14.93	0.1	0.1	0.1	0.1	86.2	0.676
Octane (C8)	CCCCCCCC	91.62	15.38	0.1	0.1	0.1	0.1	114.2	0.705
m-xylene	CC1=CC(C)=CC=C1	68.75	17.97	2.3	2.32	0.6	2	106.2	0.876

HSP=1 Texp °C 25 Manual Parameters

Antoine=1 Log10 Fit to N Parameter 15

Contains solids 4th=User 1 Cross Terms 3

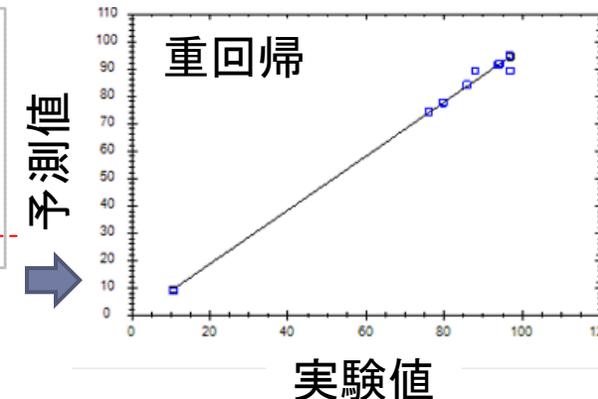
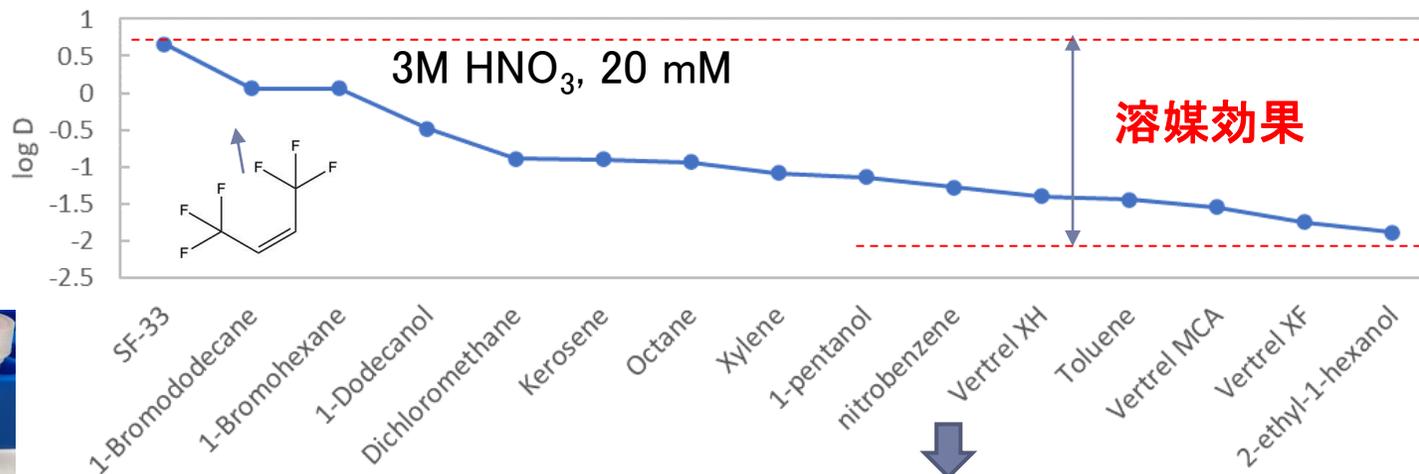
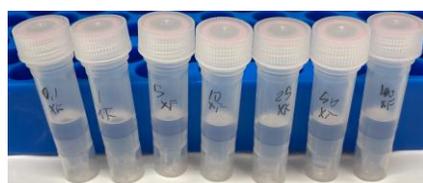
Selected Only Core set only Fit passes through 0

Data = 0.0029 - 7.8 δD - 0.35 MVol + 1.2 Bpt - 0.62 Tc + 0.75 AntC - 0.031 $\delta D \cdot \delta D$ + 1.2E-10 $\delta D \cdot \delta D$ + 1.2E-10 $\delta D \cdot \delta D$

5個のパラメータを選定して重回帰モデルを作成

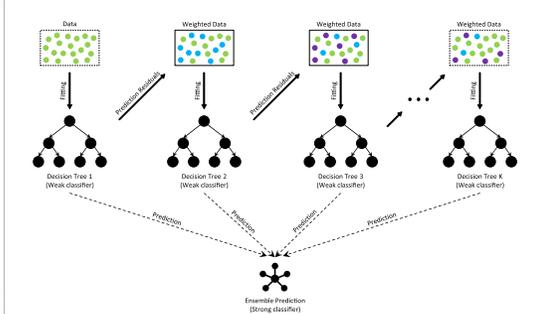
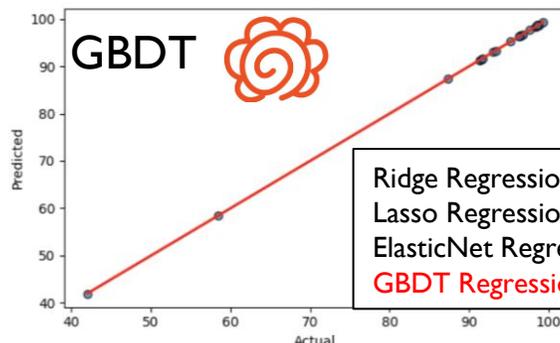
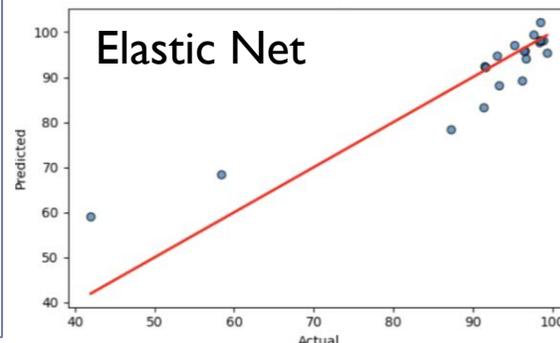
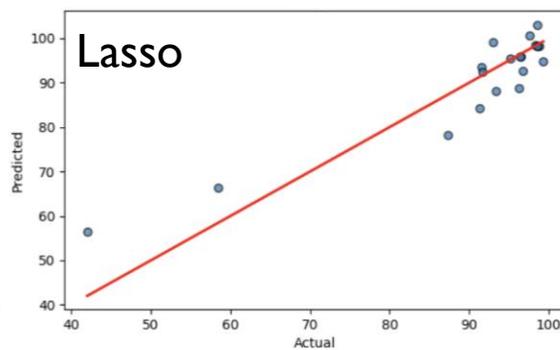
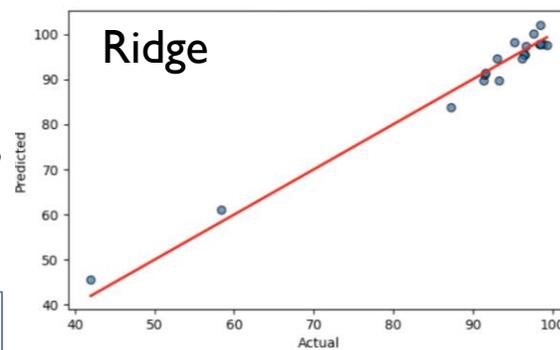
Sig.Figs: 2 R²=0.952 ΔR^2 =0.9630 RMS=3.24 MAE=2.53 RE%=3.39

Am抽出に及ぼす溶媒効果



- ・Amにおいても溶媒効果を確認！
- ・限られた条件ではあるが、SMILESからのAm抽出率推察が可能。

- ✓ 順方向の機械学習は容易だが、逆設計アプローチは難しい。最終的には溶媒の逆設計スキームを構築して、いくつかの候補を選定した。
- ✓ Amの⇒AACEアプリケーション
- ✓ 少データをEuで補えないか？
- ⇒ 転移学習の組み込み



*GBDTが最も良い結果を与えるが、過学習のリスクがある。

Ridge Regression:	-169.6900305 185084
Lasso Regression:	-269.84053015936104 ⇒ ×
ElasticNet Regression:	-21 1.93236531560
GBDT Regression:	-158.2770978930236 ⇒ ○

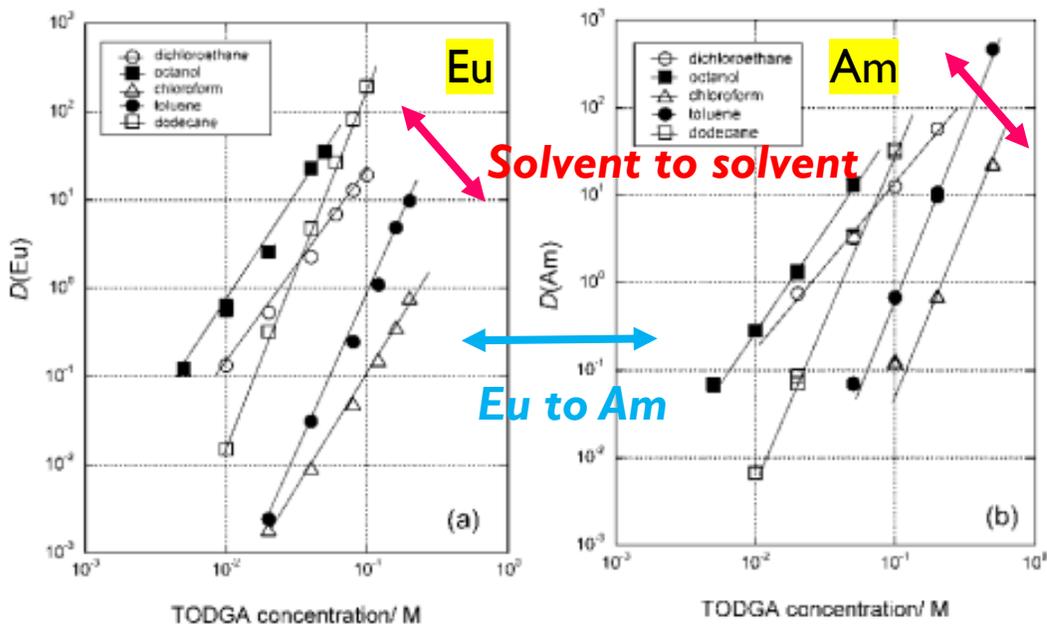
転移学習による効率的な回帰モデル構築

＜転移学習の効果、使いどころ＞

①類似したデータセットからのモデル構築 ②外挿

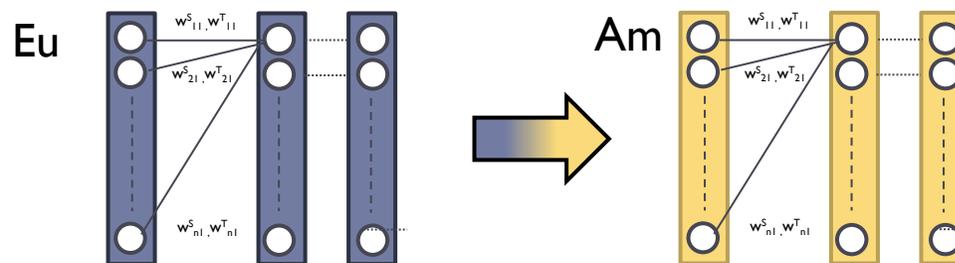
金属イオン; Eu → Am

溶媒分子; 溶媒1 → 溶媒2

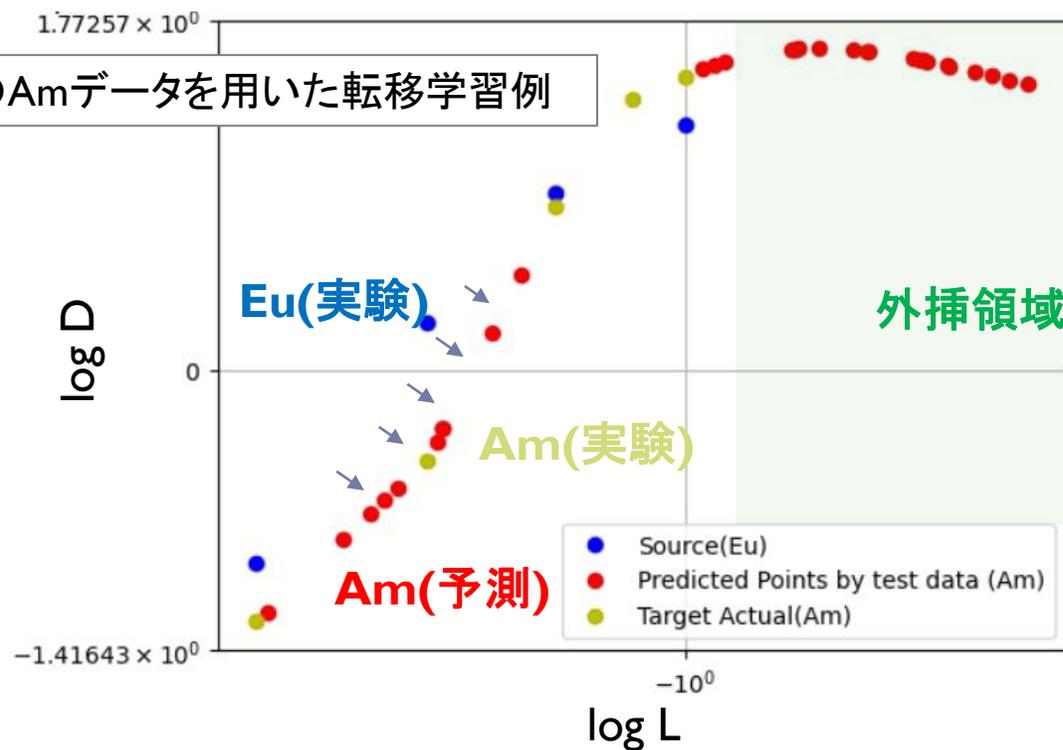


Sasaki et al., An Additional Insight into the Correlation between the Distribution Ratios and the Aqueous Acidity of the TODGA System, 25(2), Solvent Ext Ion Exch., 2007

- ✓ NNをベースモデル、Euでの抽出率推算モデルを構築。
- ✓ NN構造は引き継ぎ、AmのモデルをEuのパラを用いて構築。
- ✓ 転移学習には、古典的なTrAdaBoostR2を用いた。



実際のAmデータを用いた転移学習例



①SMILESを用いた任意分子構造からのEu抽出率の推算
 ②Eu抽出率からの、Am抽出率の推算
 ⇒Am抽出率が高く、Eu抽出率が低いものを探せばよい。

単一溶媒候補リストの生成

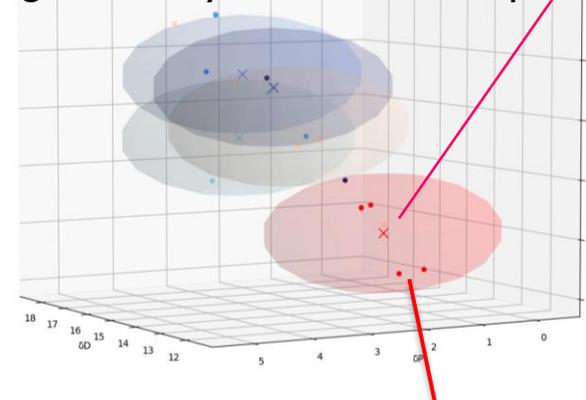
chemical	SMILES	δD	δH	δP	%E Eu (Pred.)	%E Am (Pred.)	%E Am - %E Eu (Pred.)
C5H2F10	FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	13.18	1.21	2.99	-0.251626	2.1989303	2.4505563
C6H2F12	FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	13.12	1.12	2.68	-0.1898816	1.9186218	2.1085033
Perfluorobutyl iodide(423-39-2)	FC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)I	14.05	1.94	2.33	0.04117568	2.1380103	2.0968347
IH-PERFLUOROPENTANE(CB6476607)	FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	12.96	2.02	2.1	0.03037863	1.9669247	1.9365461
C7H2F14	FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	13.13	1.86	1.86	0.02873624	1.6643044	1.6355681
C6HF13	FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	12.83	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.5662942
C8H2F16	FCC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	12.83	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.5662942
C3F6	FC(F)=C(F)C(F)F	12.83	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.544457
I-BroMoheptadecafluorooctane(423-55-2)	FC(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)I	12.67	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.5411749
C7HF15	FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	12.95	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.3899924
C4F8-2ene	F/C(=C(F)C(F)F)C(F)F	12.76	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.382778
OCTAFLUORO-2-BUTENE(360-89-4)	FC(=C(F)C(F)F)C(F)F	12.76	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.382778
IH-PERFLUOROOCCTANE(335-65-9)	FC(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)C(F)(F)F	12.76	1.86	2.31	0.0417542	1.52454	1.1837595
Octafluorocyclobutane(115-25-3)	FC1(F)C(F)(F)C(F)(F)C1(F)F	1.18	1.7	-0.0492556	1.1002238	1.1494794	

クラスターの中心部に近いもの

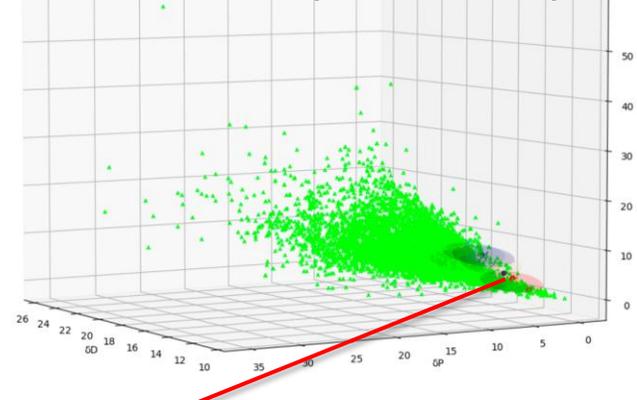
HSPによるTLの予測E値

AmとEu差分

High solubility cluster in HSP space

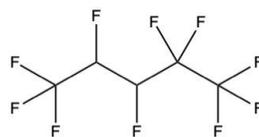


Solvent database plot on HSP space



高 %E クラスタ

混合溶媒候補リストの生成



+ α
Vertrel XF(available in large quantity)

Chemical	Additive	SMILES	Mix. ratio	δD	δH	δP	%E Eu (Pred.)	%E Am (Pred.)	%E Am - %E Eu (Pred.)
Vertrel XF	Ethyl Cinnamate	CCOC(=O)C=CC=CC=CCl	0.24	13.764	1.8048	3.0244	-0.193421	2.6088133	2.8022344
Vertrel XF	2-Nitrobenzyl Chloride	Cl=CC=C(C(=Cl)CCl)[N+](=O)[O-]	0.19	13.687	1.8628	3.0259	-0.1544927	2.6462452	2.8007379
Vertrel XF	N-Acetyl Caprolactam	CC(=O)N1CCCCC1=O	0.22	13.752	1.8984	2.9982	-0.1507962	2.6493745	2.8001707
Vertrel XF	1,1,4-Trifluorobutane	C(CC(F)F)CF	0.39	13.626	1.7508	3.0709	-0.1905244	2.6064634	2.7969878
Vertrel XF	Undecanenitrile	CCCCCCCCC#N	0.38	13.744	1.9236	2.9898	-0.1378108	2.6590335	2.7968442
Vertrel XF	Undecanenitrile	CCCCCCCCC#N	0.38	13.744	1.9236	2.9898	-0.1378108	2.6590335	2.7968442
Vertrel XF	1,2,2-Trichloropropane	CC(CCl)(Cl)Cl	0.29	13.779	1.8978	2.9879	-0.154997	2.6413949	2.796392
Vertrel XF	Guanabenz	Cl=CC(=C(C(=Cl)Cl)C=NN=C(N)N)Cl	0.2	13.68	1.764	3.052	-0.1942771	2.6015112	2.7957883
Vertrel XF	1,2-Dichlorobutane	CCC(CCl)Cl	0.34	13.83	1.8348	2.9914	-0.1905978	2.6038842	2.794482
Vertrel XF	2,4-Dimethyl-3-Pentanone	CC(C)C(=O)C(C)C	0.46	13.726	1.8712	3.0046	-0.1556578	2.6356285	2.7912862
Vertrel XF	m-Bromonitrobenzene	Cl=CC(=CC(=Cl)Br)[N+](=O)[O-]	0.19	13.725	1.8628	3.0069	-0.1589618	2.6318786	2.7908404
Vertrel XF	3-Nitrobenzotrifluoride	Cl=CC(=CC(=Cl)[N+](=O)[O-])C(F)(F)F	0.28	13.728	1.7296	3.0448	-0.2163317	2.574203	2.7905347
Vertrel XF	Zoxamide	CCC(C)(C(=O)CCl)NC(=O)Cl=CC(=C(C(=Cl)Cl)C)Cl	0.19	13.668	1.8438	3.0259	-0.1565469	2.6329439	2.7894907
Vertrel XF	Thymoquinone	CCl=CC(=O)C(=CCl=O)C(C)C	0.24	13.74	1.9488	2.9764	-0.1245331	2.6647162	2.7892494
Vertrel XF	1,2,3-Trichloro Propene	C(C(=CCl)Cl)Cl	0.26	13.73	1.6832	3.0566	-0.2361935	2.5529912	2.7891846
Vertrel XF	Triadimefon	CC(C)(C)C(=O)C(N1C=NC=N1)C2Cl							2.89879
Vertrel XF	1,2,3-Trichlorobutane	CC(C(CCl)Cl)Cl							2.788932
Vertrel XF	Hexazinone	CN1C(=NC(=O)N(C1=O)C2CC							2.883554
Vertrel XF	Coumane	ClC2C1C(=O)OC3=CC=CC=C3							2.876387
Vertrel XF	Benzene, 1-Ethoxy-2-Nitro-	CCOC1=CC=CC(=Cl)[N+](=O)[O-]							2.872887
Vertrel XF	2-Methyl Cyclohexanone	CC1CCCCC1=O							2.860594
Vertrel XF	4-Nitrobenzyl Chloride	Cl=CC(=CC=CCl)[N+](=O)[O-]	0.18	13.632	1.9116	3.0118	-0.1202285	2.665441	2.7856696

- ✓ リストの中から、価格や安全性、明らかに使用不可なものを除外し、専門家の知見から次の実験で用いる試薬を選定する。
- ✓ まずはスキームを構築した。高精度化は今後の課題である。
 - MA抽出データの拡張; 実験計画法、ベイズ推計
 - 転移学習時の誤差評価スキームの開発

MA抽出系探査のためのアプリケーション開発

AACE; Acceleration of Actinide Chemistry Experiments.

メニュー

AACE

Acceleration of Actinide Chemistry Experiments.

by Nakase Lab.

Menu

- MA Extractability
- MA Extractability
- MA Solvent Exploration
- Setting Experimental ...
- Experiment Planning



データのロード

MA Extractability

Import Hyperparam Optim TL Mod Comp

Import Data

Choose a file

Drag and drop file here
Limit 200MB per file

ドラッグアンドドロップ
ないしは直接アップ

ハイパーパラメータ最適化

MA Extractability

Import Hyperparam Optim TL Mod Comp

Hyperparameter Optimization

Optimize hyperparameters using surrogate data only.

units number options (to search)

5 x 20 x 10 x 50 x 100 x 150 x 200 x

activation options (to search)

relu x elu x

Select a range of epochs

300 1000

epochs steps

20

units number options (to search)

8 x 16 x 32 x 64 x

クリック操作によるパラ設定

GUIの裏で走るPythonコード

```
with tab2:
    st.subheader('ハイパーパラメータ最適化')
    st.caption('サロゲートデータのみを使い、ハイパーパラメータ最適化を行います。')
    # ソースデータのハイパーパラメータ最適化の設定
    units = st.multiselect(
        'units number options (to search)',
        [5, 20, 10, 50, 100, 150, 200],
        [5, 20, 10, 50, 100, 150, 200])
    activation = st.multiselect(
        'activation options (to search)',
        ['relu', 'elu'],
        ['relu', 'elu'])
    epochs_range = st.slider(
        'Select a range of epochs',
        100, 5000, (300, 1000))
    epochs_steps = st.number_input('epochs steps', min_value=20, max_value=None, value="min")
    batch_size = st.multiselect(
        'units number options (to search)',
        [8, 16, 32, 64],
        [8, 16, 32, 64])
    st.divider()
    n_trials = st.slider('探索回数', 1, 200, 100)
    if st.button('ハイパーパラメータ最適化開始', type="primary"):
        with st.echo():
            study = optuna.create_study(direction="minimize")
            study.optimize(objective, n_trials=n_trials, n_jobs=-1)
            study.best_params
```

最適パラによる転移学習の実施

MA Extractability

Import Hyperparam Optim TL Mod Comp

MA Extractability Transfer Learning

Exploration Count

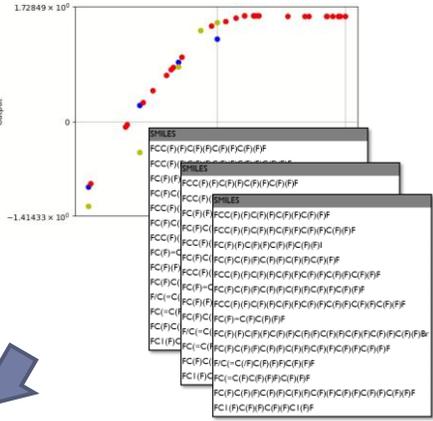
10 30 50

Output

```
{
  "lr": 0.0424881442616879
  "units": 5
  "activation": "relu"
  "epochs": 760
  "batch_size": 32
}
```

Start Transfer Learning

結果の確認と調整



実験による検証

- 多様・大量のデータの管理を容易化
- トライ&エラー、パラメータ管理の容易化
- 複雑な検討ステップ管理の容易化
- 人間介在型機械学習、逆設計の操作性向上
- 複数人での検討時のモデル管理；クラウド化
- コマンドラインを(基本的には)使わない!

コード開発は事業終了後も継続中
 ⇒東京科学大発のSU、NEUChain Technologies事業の一部
 2025年3月12日に発足!



