



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Development of Image-Based Machine Learning Systems for Predicting Solid Mixture Ratios and Application to Analysis of Solid-State Reactions [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	白倉, 逸人
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16380号
Issue Date	2025-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/94884
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	SHIRAKURA_Hayato_review.pdf, 審査の要旨



学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 白倉 逸人

審査担当者	主 査 教 授	伊藤 肇
	副 査 教 授	大熊 毅
	副 査 教 授	武次 徹也
	副 査 教 授	猪熊 泰英
	副 査 准教授	仙北 久典

学 位 論 文 題 名

Development of Image-Based Machine Learning Systems for Predicting Solid Mixture Ratios and Application to Analysis of Solid-State Reactions

(画像機械学習による混合比予測システムの開発と固相反応分析への応用)

化学研究において対象物質の存在や特性を知るための方法として分析は不可欠であり、迅速な分析手段の1つとして分子センサーが活用されている。所属研究室では、任意の鎖長で単離でき様々な機能性分子へと変換可能な脂肪族ポリケトン化合物の合成を報告している。ジケトン部位はヒドラジンとの縮合反応によりイソピラゾール環へと変換できる。イソピラゾール構造は π 共役系と、金属イオンに対する錯体形成能力を併せ持つため、微量金属イオンの存在を錯形成に伴う発色変化として検出可能な分子イオンセンサーへの応用が期待できる。

しかし、一般的に分子センサーの金属イオン配位前後の見た目の変化は、必ずしも肉眼で判別容易になるとは限らず、視認性を改良するために分子構造を変更すると分子の特徴や利点が失われてしまう可能性がある。そこで著者は、見た目の変化を画像ベースの機械学習で識別することにより、分子構造を変えることなく性能を向上できる可能性があると考えた。機械学習では複雑なパラメーター同士の関係性を構築することで様々な予測を達成しており、人間の目では識別困難な変化に対しても視覚的情報を元に識別できる可能性がある。そこで本研究では、試料画像と、混合比や反応収率などの分析値の関係性を画像機械学習で構築し、迅速な化合物分析および分子センサー性能向上手段としての応用を目指している。

本論文では、化合物の混合比を画像データから予測する機械学習システムの開発と固相反応分析への応用について、全5章で論じている。

第1章では、化学研究における分析手段としての分子センサーの利便性、イソピラゾール化合物の合成と機能性材料への展開、および化学研究における機械学習への応用例などの研究背景を記述している。

第2章では、イソピラゾール金属イオンセンサーの合成を行い、発光特性を調べた上で、性能向上に向けた画像機械学習システムのアイデアについて述べている。イソピラゾール骨格に蛍光部位としてホウ素原子と、金属イオンキレート部位としてピリジン配位子を π 共役系に組み込んだ BF_2 錯体の合成を報告している。 BF_2 錯体の黄緑色の蛍光発光は Zn^{2+} イオン存在下で黄色に変化し、 Cu^{2+} 、 Ni^{2+} 、 Co^{2+} イオン存在下では消光することを明らかにしている。固体状態では数 μg の金属イオンに対しても同様の発光変化が観測された。この結果からイソピラゾール BF_2 錯体はある程度の金属イオン検出性能を示すことが確認されたが、発光変化による定量的な識別は困難であったため、見た目の違いを金属イオンの定量化に繋げる画像機械学習システムへの着想に至った。

第3章では、画像機械学習システムの構築を行った。最初にモデルケースとして市販の砂糖（スクロース）・食塩（NaCl）重量混合比の予測を行った。混合試料画像とその砂糖・食塩比率を紐付けして機械学習システムを構築した。最適化の結果、試料画像300枚から構築された機械学習モデルは、砂糖・食塩混合比を平均絶対誤差3.9%で予測できることが明らかとなった。同様の機械学習手法で α - γ -グリシン結晶多型比は平均絶対誤差4.0%で予測できた。L/D-酒石酸のエナンチオマー比や、多成分系に対する目的化合物存在比予測にも成功した。さらに、反応後の試料画像と ^1H NMR収率からモデルを構築することで、*p*-アミノサリチル酸の固体脱炭酸反応収率の予測を平均絶対誤差5.7%で達成した。収率のリアルタイム予測や、携帯カメラで撮影した連続動画を用いた効率的な収率予測モデル構築に関しても報告している。

第4章では、機械学習システムの化学研究への応用として、mgスケールの微量固体による予測を試みた。溶液から析出した1,1'-ビナフチルのエナンチオマー過剰率は、平均絶対誤差10%程度の精度で予測できた。さらに、第2章で開発した金属イオンセンサーに対して画像機械学習による識別能力向上を試みた。構築された機械学習モデルは Zn^{2+} イオンの存在を定量的に予測することに成功し、分子センサーの性能向上としての画像機械学習システムの活用を示している。

第5章では、本博士論文の総括および将来展望を示した。上述の実験結果は、従来定量化が困難であった固体化合物の視覚的情報を、画像機械学習システムを通じて客観的な分析方法として活用するものである。本研究はさまざまな化学研究の効率化と進歩につながる分析ツールとして、画像機械学習システムの可能性を示すものと言える。

以上の結果により著者は、画像機械学習を用いた固体混合比予測システムの構築、および簡便な鏡像異性体比・反応収率予測手段や、分子センサーの定量性能向上手法としての応用を見出しており、関連化学におけるさらなる発見が期待できる将来性を有している。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。