

高橋 啓介

物質・材料研究機構統合型材料開発・情報基盤部門
研究員

実験・計算・データ科学の統合によるメタン変換触媒の探索・発見と反応機構の解明・
制御

§ 1. 研究成果の概要

本研究では**実験・計算・データ科学を統合したキャタリストインフォマティクスを推進し、新しい革新的なメタン触媒探索・反応機構解明技術を創出・実践**することを目的とし、次の 2 点の達成に重点を置く。

- (1)新規触媒の設計・実験プロセスの最適化
- (2)触媒反応機構の解明と制御

上記の目標を達成するにあたり、図 1 に示したデータベース構築・データから知識へ変換・統合プラットフォームの 3 本柱を軸に遂行する。2018 年度は「ハイスループット実験・計算の本格運用によるデータ集積の開始」、「実験・文献データからの触媒・実験条件予測」、「プラットフォームの本格運用」に重点を置いた。

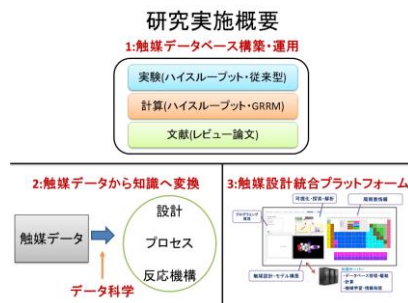


図 1 研究概要

1.触媒データベース構築: 実験・計算・文献の 3 つのデータベースを構築・運用する。

- 実験データベース:**メタン酸化カップリング反応に関するハイスループット触媒評価システムは 2018 年度中に検証を終え、本格的な運用を開始した。この装置では 20 サンプルの触媒性能を各プロセス条件で自動的に一括取得が可能である。
- 計算データベース:**メタンと金属表面反応に特化した完全自動化ハイスループット第一原理計算のプログラムの開発が完了し、本格運用を開始した。また反応経路においては、第一原理計算 (GPAW) を使い、メタンと酸素の気相反応経路の作成が完了した。
- 文献データベース:**メタン酸化反応触媒のレビュー論文より 1866 件のデータを取得し、オントロジーを使いデータ科学適用可能な状態にした。オントロジーを用いた触媒データの再構築・整理方法は論文として発表した。

2.データから知識へ:

本研究の要となるのが機械学習を使った触媒データから触媒設計を達成することである。2018 年度は文献データからの触媒予測に焦点を当てた。ここで重要となるのが記述子(触媒反応・プロセス・反応経路を決定する因子群)の特定である。2018 年度は機械学習によりデータを多次元空間

に展開し、隠れた秩序や傾向を抽出に焦点をあてた。

・文献 1868 件のメタン酸化カップリング反応触媒のデータに対して機械学習を適用し有効な触媒と実験条件を提案した論文を「*ChemCatChem* (2018) 10, 15, 3223-3228」より発表し、雑誌のカバーにも採用された。これにより、メタン酸化カップリング反応における記述子の候補の目途がついた。予測された触媒は実証実験を行っている。

・活性化エネルギー高速算出化: 文献の不均一系触媒データと機械学習を組み合わせることにより活性化エネルギーの高速算出に成功し論文「*J. Comput. Chem.* (2018) 39, 28, 2405-2408」を発表した。

3.触媒統合データプラットフォーム開発・運用:

触媒インフォマティクスのための統合データプラットフォーム「CADS: Catalysts Acquisition by Data Science」の基礎設計が完了し、基盤機能である「データベース管理・データ可視化・機械学習・ユーザー管理」の開発も完了した。プラットフォームは実験的に公開サーバー (<https://cads.eng.hokudai.ac.jp/>) にホストした。

以上の成果と同時に触媒インフォマティクスを世界に先駆けて推進・提唱するため、国際誌に「The Rise of Catalyst Informatics: Towards Catalyst Genomics (*ChemCatChem* (2018) 11, 4, 1146-1152)」と題した触媒インフォマティクスのコンセプト論文を発表し、触媒インフォマティクスの普及活動に力を入れた。

【代表的な原著論文】

1. Keisuke Takahashi, Itsuki Miyazato, Shun Nishimura, Junya Ohyama, “Unveiling hidden catalysts for the oxidative coupling of methane based on combining machine learning and literature data” *ChemCatChem* (2018) 10 (15), 3223-3228
2. Keisuke Takahashi, Lauren Takahashi, Itsuki Miyazato, Jun Fujima, Yuzuru Tanaka, Takeaki Uno, Hiroko Satoh, Koichi Ohno, Mayumi Nishida, Kenji Hirai, Junya Ohyama, Thanh Nhat Nguyen, Shun Nishimura, Toshiaki Taniike, “The Rise of Catalyst Informatics: Towards Catalyst Genomics” *ChemCatChem* (2018) 11, 4, 1146-1152
3. Lauren Takahashi, Itsuki Miyazato, Keisuke Takahashi “Redesigning the Materials and Catalysts Database Construction Process Using Ontologies” *Journal of Chemical Information & Modeling* (2018) 58, 9, 1742-1754

§ 2. 研究実施体制

(1)「ハイスループット計算・データ科学グループ」グループ

① 研究代表者:高橋 啓介 (物質・材料研究機構統合型材料開発・情報基盤部門 研究員)

② 研究項目

(1)データベース構築・整備

- ハイスループット計算プログラム開発・運用
- GPAW による反応経路マップ作成
- 文献データの集積

(2)データベースからの知識

- 活性化エネルギーの高速予測技術開発
- 記述子探索と触媒・実験環境予測
- 反応経路理解

(3)データプラットフォーム

- データベース環境整備
- システム開発・運用

(2)「データ科学・反応経路」グループ

① 主たる共同研究者:宇野 毅明 (国立情報学研究所・情報学プリンシプル研究系 教授)

② 研究項目

(1)データベース構築

- GRRM による反応経路マップ(メタンの化合プロセスにおける中間物質ネットワーク)作成

(2)データベースからの知識

- 機械学習手法開発(触媒の作用の予測に対するデータマイニング的な手法の開発)
- 記述子探索予測
- 反応経路理解(データマイニングによる触媒作用時の化合プロセスルート推定)

(3)「触媒開発・解析グループ」グループ

① 主たる共同研究者:大山 順也 (熊本大学大学院先端科学研究部 准教授)

② 研究項目

(1)データベース構築

- 従来型実験によるデータ集積
- 文献データの集積

(2)データベースからの知識

- 実験実証(触媒開発・中間体・最終体の特定・触媒構造解析)
- 実験プロセスの最適化

(4)「ハイスループット実験」グループ

① 主たる共同研究者: 谷池 俊明 (北陸先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科
准教授)

② 研究項目

(1) データベース構築

- サンプル準備
- ハイスループット実験システム開発
- 文献調査

(2) データベースからの知識

- ハイスループット実験による触媒とプロセス条件探索
- 多変量解析