

多様な天然炭素資源の活用に資する革新的触媒と創出技術
2017年度採択研究代表者

2019年度 実績報告書

高橋 啓介

北海道大学大学院理学研究院
准教授

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。2019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」、「実験データからの触媒・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。

1.触媒データベース構築： 実験・計算のデータベースを構築・運用する。

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・ハイスループット触媒評価システム(図2)が完成し本格運用を開始した。2019年度はHTP装置を用い、過去30年で蓄積されたデータ数を一桁上回る12,000点ものデータをわずか3日で取得することに成功した。この他

にも低温 OCM 触媒・メタノール-ゼオライト触媒の実験データも取得開始している。

・**計算データベース**: 「メタンと金属表面・ゼオライト」反応のハイスループット計算の本格運用が開始し、1万件のデータ取得が完了した。

2.データから知識へ:

2019年度は「ハイスループット実験データ」と「低温 OCM 触媒データ」よりデータ科学・機械学習を用いた触媒予測を開始した。

・HTP 実験データでは、OCM 反応を決定する記述子が明らかとなった。特に重要な記述子は、**実験条件(温度、アルゴン・メタン・酸素流量)や触媒組成情報(元素情報・触媒量)**である。機械学習を使った予測ではガスの流量による C2 収率の変化や鍵となる組成情報の予測にも成功した(図3参照)。これらの結果は ACS Catalysis¹に掲載され、プレス発表も行った。

・この他 OCM データに関して、実験条件の最適化や実験データからの反応機構の推定も機械学習によって成功した^{2,3}。並行して、低温 OCM 触媒データに対するデータ科学の適用も同時に行い、新規低温 OCM 触媒やゼオライト系のメタン・メタノール触媒探索も行っている。

・この他 OCM データに関して、実験条件の最適化や実験データからの反応機構の推定も機械学習によって成功した^{2,3}。並行して、低温 OCM 触媒データに対するデータ科学の適用も同時に行い、新規低温 OCM 触媒やゼオライト系のメタン・メタノール触媒探索も行っている。

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、運用に関する必要な約款の整備も終え、2019年度より本格運用が開始した。URLは(<https://cads.eng.hokudai.ac.jp/>)。運用開始からの**総利用者数 3920、登録アカウント数 34、平均月 8000 程度の総アクセス数**となっている。現時点での CADS の機能は「触媒データの公開・管理」「データの可視化」「機械学習による学習・予測」が実装されており、今後モニタ

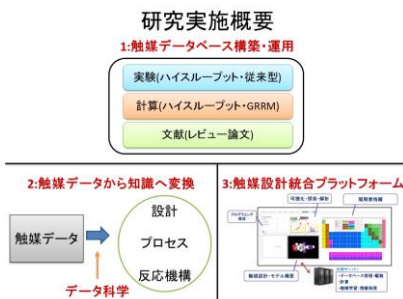


図1 研究概要

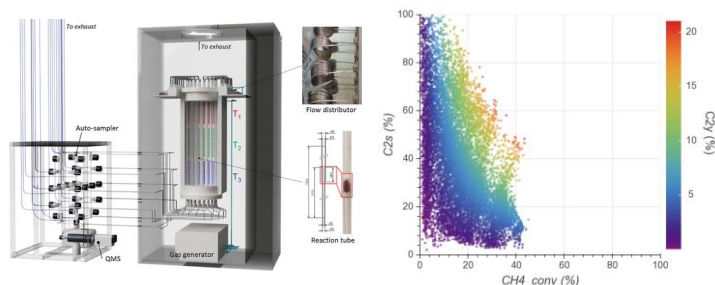


図2 OCM-HTP 実験装置と取得した 12708 データの散布図 1

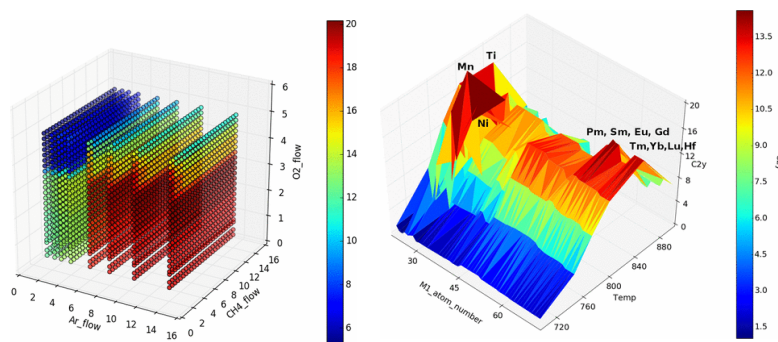


図3 HTP データと機械学習による実験条件と組成予測

リングで寄せられた意見などを参考に拡張予定である。:また本 CREST で発表済みの触媒データ (ハイスループット実験データ・その他の OCM データ)などは CADs で無償公開しており、多くの研究者にデータを使用して頂ける状態としている。

【代表的な原著論文】

1. Thanh Nhat Nguyen, Thuy Tran Phuong Nhat, Ken Takimoto, Ashutosh Thakur, Shun Nishimura, Junya Ohyama, Itsuki Miyazato, Lauren Takahashi, Jun Fujima, Keisuke Takahashi*, Toshiaki Taniike* “High-Throughput Experimentation and Catalyst Informatics for Oxidative Coupling of Methane ” ACS Catalysis (2020) 10, 921-932
2. Itsuki Miyazato, Shun Nishimura, Lauren Takahashi, Junya Ohyama, Keisuke Takahashi “Data-Driven Identification of the Reaction Network in Oxidative Coupling of the Methane Reaction via Experimental Data ” The Journal of Physical Chemistry Letters (2020) 11, 787-795
3. Junya Ohyama, Shun Nishimura, Keisuke Takahashi “Data Driven Determination of Reaction Conditions in Oxidative Coupling of Methane via Machine Learning” ChemCatChem (2019) 11 (17), 4307-4313

§ 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(北海道大学大学院理学研究院、准教授)

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 (情報・システム研究機構国立情報学研究所、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