

実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新  
2017年度採択研究代表者

2019年度 実績報告書
-----------------

清水 研一

北海道大学触媒科学研究所  
教授

触媒インフォマティクスの創成のための実験・理論・データ科学研究

## § 1. 研究成果の概要

(1)表面を規定した触媒候補の電子状態計算、反応分子候補の電子状態、表面と分子の相互作用(または表面原子の脱離)の3つのデータを理論(DFT)により蓄積し、触媒インフォマティクスに基づいた触媒・反応探索方法の確立、および(2)触媒実験の機械学習に基づく触媒材料・最適条件の探索方法論の確立を目標としている。今年度からは、「触媒分野の必須元素である遷移金属元素を用いない触媒科学の開拓」を戦略目標の1つに掲げ、「Al、Ga、In、Ti 酸化物のような d バンドが充填された(または空いた)化合物の構造制御により新規な触媒機能を発現させる」ことを目指して、以下3項目の成果を得た。

### 1. Al, Ga 酸化物不安定表面上の活性サイト探索

d<sup>10</sup> 金属酸化物表面(高指数面、ステップエッジ)上の活性サイトインフォマティクスを理論的に構築するための第一段階として、「β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> とθ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 表面の酸素欠陥生成エネルギー ( $E_{\text{Ovac}}$ )」を網羅的に計算した。準備として、表面モデル作成用の新規アルゴリズム開発も行った。

### 2. TiO<sub>2</sub> 表面における分子吸着のフロンティア軌道理論

TiO<sub>2</sub> 表面における分子吸着に関して網羅的な DFT 計算と最新のインフォマティクスの手法を用いて、フロンティア軌道(FMO)理論の触媒表面での素過程への拡張を試みた。TiO<sub>2</sub> 表面の Conduction Band (CB)の下端と分子の HOMO-1 のエネルギー差が小さいほど吸着エネルギーが大きいことを明らかにし、FMO 理論が TiO<sub>2</sub> 表面における分子吸着の半定量的な予測に利用できることを実証した。

### 3. 実験(文献)データ先導型触媒設計

CH<sub>4</sub>から C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> や C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> 等の C<sub>2</sub> 生成物を得るメタン酸化カップリング(OCM: Oxidative Methane Coupling)反応の反応データ(C<sub>2</sub> 収率), 触媒組成, 反応条件, 約 1700 点を文献より入力してデータを作成した。機械学習を用いた触媒活性予測モデルを構築し, モデルを用いたデータ解析や新規触媒の探索の方法論を示した。触媒分野における機械学習・データ科学手法の最近の応用例をまとめて総説にて紹介した。

一方で、上記の DFT 研究に基づいて、d<sup>10</sup> 系典型元素(In)の特異な触媒作用を発見するための実験的検討を開始した。その結果、ゼオライト触媒表面の In ヒドリド種の合成・構造解析に初めて成功し、その優れたエタン脱水素触媒作用を発見した。開発触媒はエタン脱水素(エチレン生成)に対して従来型の白金系触媒よりも高い耐久性・選択性を示した。実験・理論化学によるメカニズム研究により、典型金属元素を用いた脱水素用触媒の新規コンセプトを提案した。

### 【代表的な原著論文】

1. Keisuke Suzuki, Takashi Toyao, Zen Maeno, Satoru Takakusagi, Ken-ichi Shimizu, and Ichigaku Takigawa, “Statistical Analysis and Discovery of Heterogeneous Catalysts Based on Machine Learning from Diverse Published Data”, *ChemCatChem* 2019, 11, 4537-4547

2. Takashi Kamachi, Toshinobu Tatsumi, Takashi Toyao, Yoyo Hinuma, Zen Maeno, Satoru Takakusagi, Shinya Furukawa, Ichigaku Takigawa, and Ken-ichi Shimizu, “Linear Correlations between Adsorption Energies and HOMO Levels for the Adsorption of Small Molecules on TiO<sub>2</sub> Surfaces”, *J. Phys. Chem. C* 2019, 123, 20988–20997
3. Isolated Indium-hydrides in CHA Zeolites: Speciation and Catalysis for Non-oxidative Dehydrogenation of Ethane, Zen Maeno, Shunsaku Yasumura, Xiaopeng Wu, Mengwen Huang, Chong Liu, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, *J. Am. Chem. Soc.*, 2020, 142, 4820–4832

## § 2. 研究実施体制

### (1)「清水」グループ

- ① 研究代表者:清水研一 (北海道大学触媒科学研究所 教授)
- ② 研究項目
  1. 理論先導型触媒設計
  2. 実験先導型触媒設計
  3. 文献値先導型触媒設計

### (2)「蒲池」グループ

- ① 主たる共同研究者:蒲池 高志 (福岡工業大学工学部生命環境科学科 准教授)
- ② 研究項目
  1. 理論・データ科学による触媒設計手法の構築

### (3)「日沼」グループ

- ① 主たる共同研究者:日沼 洋陽 (千葉大学先進科学センター 特任助教)
- ② 研究項目
  1. 理論材料科学による触媒設計手法の構築