

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

2020年度 年次報告書
-----------------

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

実験・計算・データ科学を統合した触媒インフォマティクスを推進し、「メタン酸化カップリング反応」と「メタノール合成」触媒の設計・開発を進める。研究は「独自触媒データベースの構築」「インフォマティクスによるデータから触媒設計」「触媒インフォマティクス統合プラットフォーム」の3本柱を中心に進めている。データベースに関しては、OCM ハイスループット実験装置(谷池 G)の開発に成功し、2020年までに約6万件超のOCM触媒データの取得が完了している。また独自開発したハイスループット計算(高橋 G)においても、約2万件の計算OCMデータ取得が完了している。インフォマティクスからの触媒設計では、ディープラーニング(高橋 G)とハイスループット実験データ(谷池 G)の連携により20%近くの収率を出す文献未報告のOCM触媒「TiKW-SiO<sub>2</sub>」の発見や、新規触媒としてMo-Cs-W/BaOが発見され、C2選択率83.1%・収率16.2%を実現した。また独自開発したアイテムセットマイニング(宇野 G)を使い、未報告低温OCM触媒の開発(大山 G)に成功し、500℃でOCM活性を示す未報告の特異な触媒「Al-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>」と「Ag-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>」と500℃で収率18%のSr/La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が発見された。その他にも独自に集積した実験データ(大山 G)や文献データと機械学習(高橋 G)を組み合わせた触媒開発だけでなく触媒開発アプローチとメカニズムの提案と検証も成功している。また触媒プラットフォーム「CADS」の開発(高橋 G)の開発にも成功し、簡単な操作で触媒インフォマティクスを実践できる世界初の触媒データセンターとして一般公開で運用している。

## § 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化学部門、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
- ハイスループット計算による反応経路作成
- 文献(メタノールとOCM論文)

(2)データベースからの知識

- 機械学習による触媒予測
- 教師なし学習
- アイテムセットマイニング
- 計測データの活用

(3)データプラットフォーム

- 機能拡張・追加
- 論文発表・SMS・プレス活用した宣伝
- 触媒・材料データベースの集約

(2)「データ科学・反応経路」グループ(研究機関別)

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

(2)データベースからの知識

- ハイスループット実験のデータ解析
- アイテムセットマイニング法及びデータマイニング手法開発
- データ利用による気相反応シミュレーターの頑健化による OCM の反応機構解明

(3)「触媒開発・解析グループ」グループ(研究機関別)

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

- 高精度実験によるデータ集積(OCM・メタノール合成)
- 触媒構造・化学状態の計測データ集積

(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)
- 機械学習による予測の実験実証

(4)「ハイスループット実験」グループ(研究機関別)

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(物質化学領域)、教授)

② 研究項目

(1)データベース構築

- OCM 用ハイスループット触媒評価システムの運用
- メタノール用ハイスループット触媒評価システムの運用

(2)データベースからの知識

- 可視化・多変量解析・機械学習と連携した触媒開発

【代表的な原著論文情報】

(1)Catalyst Acquisition by Data Science (CADS): a web-based catalyst informatics platform for discovering catalysts

J Fujima, Y Tanaka, I Miyazato, L Takahashi, K Takahashi

Reaction Chemistry & Engineering 5 (5), 903-911

(2)Data-driven identification of the reaction network in oxidative coupling of the methane reaction via experimental data

I Miyazato, S Nishimura, L Takahashi, J Ohyama, K Takahashi

The journal of physical chemistry letters 11 (3), 787–795

- (3) Revisiting Machine Learning Predictions for Oxidative Coupling of Methane (OCM) based on Literature Data

S Nishimura, J Ohyama, T Kinoshita, S Dinh Le, K Takahashi

ChemCatChem 12 (23), 5888–5892

- (4) Representing the Methane Oxidation Reaction via Linking First-Principles Calculations and Experiment with Graph Theory

L Takahashi, J Ohyama, S Nishimura, K Takahashi

The Journal of Physical Chemistry Letters 12 (1), 558–568

- (5) Multidimensional Classification of Catalysts in Oxidative Coupling of Methane through Machine Learning and High-Throughput Data

K Takahashi, L Takahashi, TN Nguyen, A Thakur, T Taniike

The Journal of Physical Chemistry Letters 11 (16), 6819–6826