

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

2021年度 年次報告書

高橋 啓介

北海道大学 大学院理学研究院化学部門
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の触媒設計」「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により、2021年3月までに約9万件超の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1万件の計算OCMデータ取得が完了している。その他メタノール触媒データ、XPSによる触媒の酸化状態の計測データも取得している。インフォマティクスからの触媒設計では、機械学習とハイスループット実験データと連携によりC₂収率20%を超える多数の文献未報告のOCM触媒が発見された。特筆べき触媒として「Sr-Mo-BaO(収率21.2%)・Mo-Cs-W-BaO(収率16%・選択率83%)」の発見に成功した。また新しい方法論として触媒ビッグデータの「知識のネットワーク化」にも成功した。このネットワークにより機械学習では不可能であった理解を伴う触媒設計が可能になり、K-V-Eu-BaO・Li-Ti-W-BaO等の20%を超える触媒設計に成功した。また触媒遺伝子を提案し、触媒の新たな記述方法を提案した。文献データとハイスループット実験を組み合わせたデータに対して機械学習を適用することにより、450℃でC₂収率15%の活性を持つGa-Sr-Yb-La₂O₃触媒を発見した。触媒プラットフォーム「CADS」は10を超える機械学習手法の実装、多次元可視化方法などの機能を拡張させ、国内外の100を超える研究者により日常的に利用されている。またOCM以外の触媒データも増えてきており、触媒データセンターとしても機能している。

§ 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

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

- ・ 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)
- ・ 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
- ・ 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

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

- ・ 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

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

- ・ 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
- ・ 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

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

- 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
- 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) Shun Nishimura*, Junya Ohyama, Xinyue Li, Itsuki Miyazato, Toshiaki Taniike, **Keisuke Takahashi***
Machine Learning-Aided Catalyst Modification in Oxidative Coupling of Methane via Manganese Promoter
Ind. Eng. Chem. Res (2022) Accepted 10.1021/acs.iecr.1c05079
- 2) Junya Ohyama*, Yuka Tsuchimura, Airi Hirayama, Hiroki Iwai, Hiroshi Yoshida, Masato Machida, Shun Nishimura, Kazuo Kato, **Keisuke Takahashi**
Relationships among the Catalytic Performance, Redox Activity, and Structure of Cu-CHA Catalysts for the Direct Oxidation of Methane to Methanol Investigated Using In Situ XAFS and UV-Vis Spectroscopies
ACS Catal (2022), 12, 2454-2462
- 3) Lauren Takahashi*, Thanh Nhat Nguyen, Sunao Nakanowatari, Aya Fujiwara, Toshiaki Taniike, **Keisuke Takahashi***
Constructing catalyst knowledge networks from catalyst big data in oxidative coupling of methane for designing catalysts
Chem. Sci (2021), 12, 12546-12555
- 4) Junya Ohyama*, Airi Hirayama, Yuka Tsuchimura, Nahoko Kondou, Hiroshi Yoshida, Masato Machida, Shun Nishimura, Kazuo Kato, Itsuki Miyazato, **Keisuke Takahashi**
Catalytic direct oxidation of methane to methanol by redox of copper mordenite
Catal. Sci. Technol., (2021), 11, 10 3437-3446
- 5) **Keisuke Takahashi***, Jun Fujima, Itsuki Miyazato, Sunao Nakanowatari, Aya Fujiwara, Thanh Nhat Nguyen, Toshiaki Taniike, Lauren Takahashi

Catalysis Gene Expression Profiling: Sequencing and Designing Catalysts
J. Phys. Chem. Lett., (2021), 12 30 7335-7341