

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

2021 年度 年次報告書
------------------

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

マテリアルズインフォマティクス(MI)の固体触媒への展開は萌芽的段階にある。本研究では、(1)多様な候補材料の理論計算や機械学習を積極的に用いた触媒科学(触媒インフォマティクス)の創成、及び、(2)本手法を活用した触媒材料の開発を目的とする。

日沼グループ(G)は第一原理計算により多様な金属酸化物表面のモデル化、表面の電子状態・反応性(表面欠陥生成エネルギー)の網羅的な計算を実施してきた。今年度は、水素化物、炭化物、窒化物、硫化物の表面活性サイトのインフォマティクスを構築した。また、対応格子の存在に依存しない境界面指向のアプローチにより、傾角粒界モデルを構築するアルゴリズムを提案した。

蒲池 G は表面上での分子の活性化・吸着を網羅的に理論計算し、触媒素過程のデータを蓄積すると同時に、酸化物表面と多様な分子の相互作用の理論化を進めてきた。今年度は第一原理計算によりステップエッジ等の複雑表面上のメタンの活性化に関するインフォマティクスを構築した。アルカリ土類金属酸化物 4 種類 (MgO、CaO、SrO、BaO) において、それぞれ 5 種類の表面構造を作成し、メタン酸化カップリング反応に対する活性点構造・電子状態の影響を定量的に示した。

清水 G は未探索の触媒組成の提案(外挿的提案)を可能とする機械学習モデルを開発した。本モデルでは、触媒構成元素そのものを学習に使うのではなく、その特徴量(電気陰性度、融点等)と組成の積を予測記述子として用いることで、元々のデータセットに含まれている元素に縛られることなく有望な触媒候補元素を提案することが可能である。本手法を逆水性ガスシフト反応用の多元素含有触媒の開発に応用し、世界最高レベルの反応速度を示す7元素系触媒の開発に成功した。また、理論先導で得られたコンセプトに基づいて、金属水素化物(TiH<sub>2</sub>)がプロパン脱水素反応を極めて低い活性化エネルギーで促進することを見出した。

## § 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 (産業技術総合研究所 主任研究員)

#### ② 研究項目

1. 理論材料科学による触媒設計手法の構築

### 【代表的な原著論文情報】

- 1) Propane Dehydrogenation Catalysis of Titanium Hydrides: Positive Effect of Hydrogen Co-feeding, S. Yasumura, Y. Wen, T. Toyao, Y. Kanda, K. Shimizu, Z. Maeno, Chemistry Letters 2022, 51, 88-90.
- 2) Surface activation by electron scavenger metal nanorod adsorption on TiH<sub>2</sub>, TiC, TiN, and Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yoyo Hinuma, Shinya Mine, Takashi Toyao, Zen Maeno, Ken-ichi Shimizu, Phys. Chem. Chem. Phys., 2021, 23, 16577-16593.
- 3) Analysis of Updated Literature Data up to 2019 on the Oxidative Coupling of Methane Using an Extrapolative Machine-Learning Method to Identify Novel Catalysts, Shinya Mine, Motoshi Takao, Taichi Yamaguchi, Takashi Toyao, Zen Maeno, S. M. A. Hakim Siddiki, Satoru Takakusagi, Ken-ichi Shimizu, Ichigaku Takigawa, ChemCatChem 2021, 13, 3636-3655.
- 4) Doubly Decorated Platinum-Gallium Intermetallics as Stable Catalysts for Propane Dehydrogenation, Yuki Nakaya, Feilong Xing, Hyungwon Ham, Ken-ichi Shimizu, and Shinya Furukawa\*, Angew. Chem. Int. Ed. 2021, 60, 19715-19719.
- 5) Redox-Driven Reversible Structural Evolution of Isolated Silver Atoms Anchored to Specific Sites on  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, H. Kubota, S. Mine, T. Toyao, Z. Maeno, K. Shimizu, ACS Catalysis 2022, 12, 544-559.