機械学習から脱却した触媒インフォマティクスによる 合成・計測データが連動した不均一固体触媒の開発

高橋 ローレン*

Development of Heterogeneous Solid Catalysts Linked with Synthesis and Measurement Data by Catalytic Informatics Moving Away from Machine Learning

Lauren TAKAHASHI*

触媒インフォマティクスは触媒データに隠された傾向から知識を抽出し触媒を設計しようとする新しい分野である。触媒インフォマティクスでは機械学習が主流となって進められてきたが、機械学習は機械がどのように学習したかという部分が不明確である。そのため「ブラックボックス」手法ともいわれている。そこで本提案では理解を伴う触媒インフォマティクス手法の開発と実験実証を実施した。本研究では触媒ネットワーク法という方法を独自の開発を持ち触媒データ内の傾向を可視化することに成功した。対象とした反応はメタンから直接エチレン・エタンに変換するメタン酸化カップリング反応を対象とした。触媒ネットワーク法による理解を伴った触媒開発を実施し、設計された触媒実験においても高い活性を示すことが実証された。

1. 序論

触媒インフォマティクスは、触媒の設計や触媒ビッグデータにおけるパターンや傾向を理解するための強力な手法である¹⁻²⁾。機械学習や深層学習によってビッグデータから知見を抽出することが可能であるが、その結果の解釈が難しい「ブラックボックス問題」に直面することが多い。特にOCM（酸化的メタンカップリング）の複雑な系においては、ある化学元素が一定の性能を示す場合でも、触媒の組み合わせや組成によってその性能が変動するため、このブラックボックス問題が顕著である。以前の研究では、グラフ理論を用いて触媒の組み合わせ、反応条件、C2収率をノードとしてネットワークを構築する触媒ネットワーク法が開発された。OCM反応の高スループット実験から得られたデータセットを活用して高いC2収率を示す触媒が特定された。したがって、グラフ理論によるネットワークは、反応ネットワークの複雑性を視覚化し、実験データを多次的に表現する手段となり得る。本研究では、化学元素、反応条件、C2収率に関する触媒文献ビッグデータの関係性をグラフ理論で表現することは効果的である。そこで本研究では過去のメタン酸化カップリング反応の文献データを用い、実験条件、触媒組成、触媒調製から触媒を設計する。

2. 方法

使用したデータセットは421のOCM論文から収集され、1802のデータが含まれている。集積したデータは組成、反応条件、触媒調製、C2収率が示されている。触媒ネットワーク作成のためデータの前処理を実施した。触媒ネットワーク法では組成、反応条件、触媒調製、C2収率の関係性をネットワークとして構築した。ネットワークは変と頂点からなり、辺は関係するものを結びつけ、頂点は組成、反応条件、触媒調製、C2収率となる。このような形にすることにより関連するデータの関係性を表現していく。例えばC2収率が高い柱と低い柱をそれぞれ配置することにより、それらに関連する組成、反応条件、触媒調製、C2収率が描写されることとなる。構築されたネットワークはフォースアトラス法により力関係を反映させたネットワークとする。フォースアトラス法では辺はバネのような引力を持つことで空間的に配置される。これらの力により位置が決定され、バランスの取れた状態に収束する動きが生まれる。これにより関連する頂点と辺の関係から、類似性、相互作用、および関係性を示す。このため、触媒ビッグデータにおける最適化されたネットワーク構築は、触媒間の相互作用および反応条件やC2収率などの変数との関係性を明らかにすることが期待される。

3. 結果と考察

構築されたOCMの触媒ネットワークによる収率が高いと示された触媒3つの触媒が設計された。提案された3つの触媒は (Ag/MnO₂ (C1), CsLiMn/BaO (C2), LiSrY/La₂O₃ (C3)) である。これらの触媒は触媒-担持体の触媒であり、触媒ネットワーク法から含浸法による触媒調整が効果的と示されたため、含浸法によって触媒調整を実施した。これらの触媒はガス流通型の固体触媒装置を用いて実施した。ガスはメタンガス、酸素、爆発領域を避けるため窒素ガスと3種のガスによって実施した。また反応に使用した反応器はSUS316Lのため、反応管の影響を考慮するため触媒を入れない状態で実験し参照の値として定義した。この反応装置において3つの触媒でのC2収率を測定し、ネットワーク解析が触媒設計に及ぼす影響を検証した。実験の結果、すべての触媒 (C1, C2, およびC3) がブランク (参照値と比較してC2収率で活性を示し、C1およびC2では700°C, C3では600°Cで活性が開始した。また、提案されたすべての触媒でCO_xの収率がブランクよりも低いことが確認された。特にC3では、600°Cで活性が出現し、複合カチオンを含む触媒ネットワークの設計意図に合致しており、構築された触媒ネットワークが過去の研究で報告された実験結果を裏付けるものであることを示唆している。提案されたすべての触媒が活性を示したことから、この手法に基づく触媒設計が有用である可能性がある。これらのネットワークは、絶対的なC2収率の値ではなく、ネットワークとC2収率の位置関係によって触媒の相対的な活性を反映している可能性が示唆される。

4. 結論

ビッグデータを用いた機械学習や深層学習によるインフォマティクスは、その結果の理由が不明確である「ブラックボックス問題」に直面することが多い。そのため本研究では触媒ネットワーク法を開発し理解できるインフォマティクス手法を実施した。構築されたネットワークにおいて、重要となる触媒元素、担持体が明確化された。また、反応活性に好影響また悪影響を及ぼす可能性のある反応条件が、触媒ネットワーク法により明確となった。結果としてAg/MnO₂, CsLiMn/BaO, LiSrY/La₂O₃の3触媒が提案され含浸法によって触媒調製された。実際の実験を行った結果、3つの触媒はOCM反応において活性触媒であることが実証された。今回構築された触媒ネットワークは、ネットワーク内の関係性が過去のOCM実験反応を反映していることが確認され、ネットワーク内の近接に基づく考察が触媒設計に応用可能であることが示唆された。これらの結果は、触媒ネットワーク法に基づくネットワークが今後、他の触媒反応およびデータセットにも適用可能であることを示しており、触媒ネットワーク法理解を伴う触媒インフォマティクス法として今後適応範囲が広がっていくことが期待できる。

REFERENCES

- 1) K. Takahashi, *et al.*, *ChemCatChem*, **11.4** (2019) 1146-1152.
- 2) K. Takahashi, *et al.*, *Chemical Communications*, **59.16** (2023) 2222-2238.
- 3) L. Takahashi, *et al.*, *Chemical Science*, **12.38** (2021) 12546-12555.
- 4) Y. Hasukawa, *et al.*, *The Journal of Physical Chemistry C*, **129.1** (2025) 391-401.