

機械学習を用いた OCM 触媒開発を思考した実験データ収集と予測検証

(北陸先端大¹・北大²・熊大³) ○西村 俊¹・凌 子健¹・GARCIA-ESCOBAR Fernando²
・高橋 ローレン²・大山 順也³・高橋 啓介²

1. 緒言

実験・シミュレーション・文献から得られる大きなデータセットを作成し、分類・回帰・可視化などのデータ情報学のツールを活かして触媒開発を先導する手法（触媒インフォマティクス）が注目されている。¹⁾ しかし、その実践の現場では、均質なデータを効率的に収集するためのハイスループットスクリーニング（HTS）実験システムの構築やデータ認識を意識した探索空間の設定、実際の触媒作用と計算データの違いや逆問題（調製可能性）、不均質なデータの前処理方法など、様々な課題解決が必要な状況にある。²⁾ また、HTSのような広範囲な実験データ収集を続けることで到達できうる成果とデータ情報学を用いて先導されることで初めて到達点できる成果の違いが必ずしも明確ではなく、触媒インフォマティクスへの注目の眼差しと共に懐疑的な見方も未だに根強い状況にある。

本発表では、メタン酸化カップリング（OCM）反応用触媒開発を題材に同じデータセットを出発点として、従来の材料スクリーニングから特徴を捉えた材料探索による触媒開発（従来型）と、機械学習を用いたデータ相関性から展開する材料提案に委ねた触媒開発（データ駆動型）について、実際に触媒調製・OCM 性能評価を行うことで実験的に予測の検証・比較を行い、両者の特徴を考察した。

2. 実験

OCM 反応は6つの触媒を同時に評価可能な並列触媒反応システムにより実施した。周期表である程度の規則性をもつ34元素と未担持（none）の35種の範囲から1~2元素担持触媒を調製し、基礎となるOCM触媒データ2,200データ（275触媒×8温度）を収集した。次いで、特徴的な触媒挙動（従来型）ないしは機械学習による相関描写（データ駆動型）の手法に基づく2~3元素担持触媒を探索し、それぞれのOCM触媒活性（エタン・エチレン生成物の合計：C2収率）を比較した。

機械学習は87元素の探索空間に対して、線形回帰（Liner）、ランダムフォレスト回帰（RFR）、サポートベクター回帰（SVR）からOCM触媒予測を行った。ここでは、物理化学量データベース（XenonPy）

から得られる元素ごとの物理化学量を触媒材料の特徴量記述に利用した検討について報告する。

3. 結果および考察

まず、我々の反応装置および反応条件（CH₄/O₂: 3.0, CH₄+O₂: conc. 90.3%）では、標準的なOCM触媒であるNa-Mn-W/SiO₂は最大C2収率21%（at 800°C）を示した。これが1つの触媒開発目標値となる。

[従来型]

1元素担持触媒の結果から、Mn, Ce, Srを中心元素とした担持触媒で比較的高いC2収率が認められた。そこでMn-XとCe-Xについてデータ収集を行い、更にその結果に基づきCeCa-XとCeK-Xへ展開した。その結果、Ce系の触媒組成で最大C2収率が20.5%と19.3%の触媒組成物の発見に至った。

[データ駆動型]

従来型の初期探索段階で得られた275触媒の反応データから同一担体のデータである1,360点を抽出し、機械学習による触媒予測を行った。上述の3種類の回帰手法で2元素と3元素の担持触媒を予測し、上位15種類を実際に調製・評価した（3手法×2種類×各15触媒：合計90触媒）。その結果、LinerやSVRでは最大C2収率17%程度の触媒組成物に留まった。一方で、RFRでは最大C2収率19.4%を確認し、特にCe系の触媒組成で18%以上を示す複数の触媒組成物の発見に至った。

[考察]

従来型の触媒探索手法では、データの特異点の周辺探索によりCeを中心とする触媒組成に着目し、新たな高活性触媒を発見した。一方、データ駆動型の触媒探索では、回帰手法や材料の特徴量記述の仕方により結果にバラツキは生じるが、空間拡張により元々の探索空間には含まれない元素を触媒組成物とする提案が可能で、更に共通のキー元素となるCeを含む多彩な高活性触媒の発見に至った。³⁾

1) K. Takahashi *et al.*, *Chem. Commun.*, **59**, 2222 (2023); *ChemCatChem*, **11**, 1146 (2019).

2) S. Nishimura *et al.*, *Catal. Sci. Technol.*, **13**, 4646 (2023); *ibid.*, **12**, 2766 (2022).

3) 西村, 高橋, Garcia-Escobar, 特願 2024-135276 号。