

データベースと機械学習モデルを活用したアンモニア合成触媒の探索 II

Exploring catalysts for ammonia synthesis using databases and machine learning models II

名大工¹, ◯(M1)堀田 拓弥¹, 旭 良司¹Nagoya Univ.¹, ◯Takuya Horita¹, Ryoji Asahi¹E-mail: horita.takuya.il@s.mail.nagoya-u.ac.jp

アンモニアは化学肥料として人類が最も多く生産する化学物質である。しかし従来のアンモニア合成反応は高温高压条件下で行われており、それによる CO₂ 排出は総排出量の数%となっている。従って昨今、マイルドな条件でのアンモニア合成の実現を目指して、触媒材料の開発が盛んに行われている。本研究では、新規アンモニア合成触媒の発見を目的とする。材料の選定には、オープンデータベース、機械学習モデル、そして、第一原理計算を用い、高速なスクリーニングを行うことを試みた。

機械学習モデルとして Open Catalyst Project (OCP)のオープンデータベースで訓練されたニューラルネットワーク (NN) モデルを用いた [1]。OCP が提供する Python モジュールを用いて、低ミラー指数表面 353 個の表面を作成し、吸着物である窒素原子を吸着可能なサイトに設置した。次に、NN モデルを用いて構造最適化を行い、安定な吸着構造と吸着エネルギーを求めた。吸着エネルギーに関しては、第一原理計算結果と比較し、妥当性を確認した。

本研究で生成した $E(N^*)$ のヒストグラムを Fig.1 に示す。表面のデータは $-3 \leq E(N^*) \leq -1.5$ に集中している。一方、アンモニア合成の触媒活性は $-2 \leq E(N^*) \leq -1$ に頂点を成す火山型であることが知られている[2]。そこで、CrabNet [3] の self-attention 機構を用いて、組成と $E(N^*)$ の関係を、より詳細に調べることで材料設計の指針を得ることを試みた。上記データを用いて、組成の埋め込みベクトルから $E(N^*)$ を予測するモデルを構築した後、各元素の $E(N^*)$ に対する寄与を調べた。Fig.2 に各元素の寄与度の平均値を示す。これらの結果より、 $-2 \leq E(N^*) \leq -1$ を有する物質への寄与が大きい元素として、希土類元素、IIIA 族 (B, Al)、および、遷移金属元素 (Ru, Rh, Ni, Cu, Co) が示された。

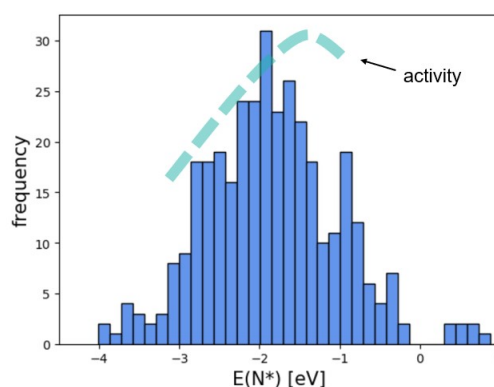
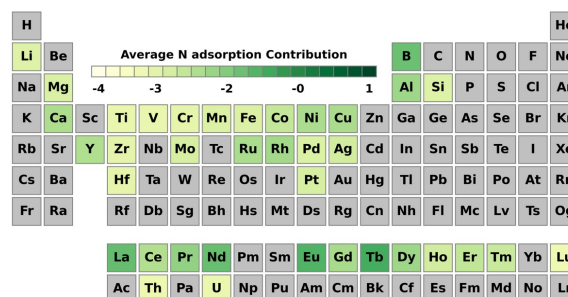


Fig.1 Catalyst surface distribution

Fig.2 Element contribution to $E(N^*)$ [1] <https://opencatalystproject.org/>

[2] Jing Zhou et al., ACS Cat. 13, 2190 (2023).

[3] A.Y-T. Wang et al., npj Comp. Mater 7, 77 (2021).