

Title	ハイスループット実験と遺伝的アルゴリズムを組み合わせたコンビナトリアル材料探索法の確立
Author(s)	瀧本, 健
Citation	
Issue Date	2023-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/18434
Rights	
Description	Supervisor: 谷池 俊明, 先端科学技術研究科, 博士

氏名	瀧本 健		
学位の種類	博士 (マテリアルサイエンス)		
学位記番号	博材第 558 号		
学位授与年月日	令和 5 年 3 月 24 日		
論文題目	Establishment of combinatorial material exploration method based on high-throughput experimentation and genetic algorithm		
論文審査委員	谷池 俊明	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	金子 達雄	同	教授
	松村 和明	同	教授
	DAM, Hieu Chi	同	教授
	高橋 啓介	北海道大学	准教授

論文の内容の要旨

Most of the chemical reactions in the world are composed of several elementary reactions. Therefore, even if one element is controlled, other elements will affect it, making it difficult to achieve the desired control. For this reason, it is common practice to add multiple elements for control, and this makes material design multidimensional. However, because the interactions between elements in multidimensional material design are very complex, material development to date has mainly been a trial-and-error approach based on intuition and experience. In this dissertation, combinatorial materials exploration, which combines materials informatics (MI) and high-throughput experimentation (HTE), leads to a new design guideline for materials. The main research results are as follows:

In **Chapter 2**, a high-throughput experimental protocol was established for yellowing inhibition of transparent plastics on the basis of solution film casting on microplates and ultraviolet/visible spectroscopic evaluation using a microplate reader. The combination of this protocol with a genetic algorithm (GA) enabled a large-scale exploration for stabilizer formulations. Furthermore, the obtained data were analyzed and validated based on decision tree classification and force-directed graphs. As a result, we succeeded in deriving a formulation design guideline that it is important to formulate as many mutually complementary and synergistic stabilizers as possible.

In **Chapter 3**, HTE instrument and GA were studied in combination. Catalyst design for low-temperature pyrochemical reforming of methane was investigated. The vast amount of data generated by the high-throughput experiments

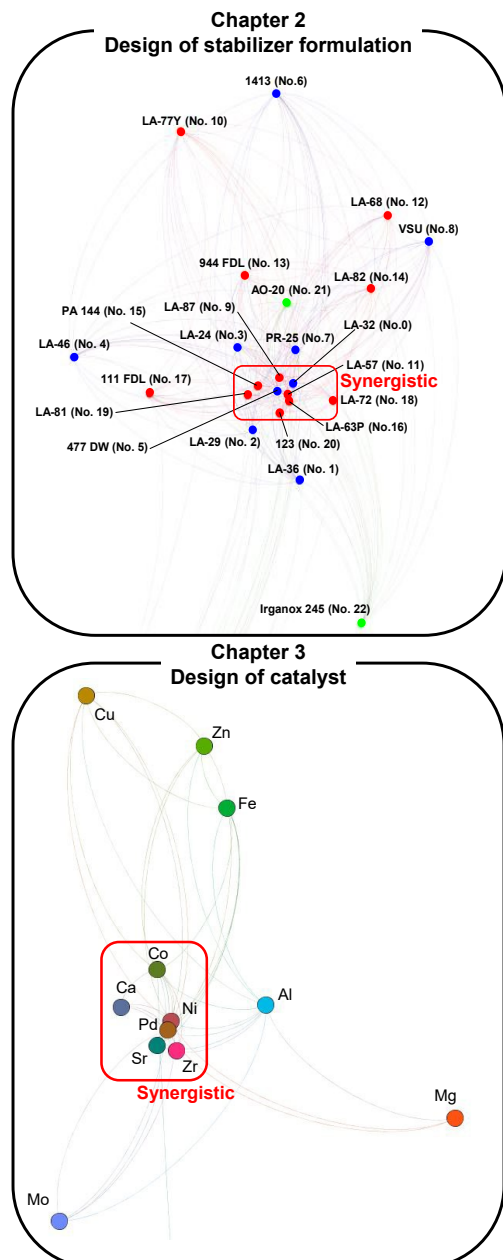


Fig. 1. Materials design guidelines in this dissertation.

was subjected to various data science techniques to obtain guidelines for catalyst design and process optimization. Catalyst exploration revealed that the combination of elements belonging to different families, mainly Ni and Pd, has a synergistic effect on catalytic performance. Visualization using force-directed graphs also revealed that it is important to include as many synergistic elements as possible in the design of high-performance catalysts.

In summary, the two verifications achieved a large-scale combinatorial search. In addition, it was found that it is very important to select and coexist elements that establish synergistic effects with each other in the multidimensional material design for chemical reaction control. In conclusion, this study has demonstrated a new methodology for multidisciplinary material design through “Realization of multidimensional exploration”, “Discovery of new combinations” and “Derivation of design guidelines”.

Keywords: combinatorial materials exploration, materials informatics, high-throughput experimentation, photo degradation, dry-reforming reaction

論文審査の結果の要旨

本論文は、化学反応制御に係る多元的な材料設計を目的としたコンビナトリアル化学アプローチの確立と実証に関する研究成果をまとめたものである。

化学反応は複数の素反応によって構成されることがほとんどであるため、これを制御するための材料設計は多元的になりがちである。しかし、組み合わせ最適化のためのコンビナトリアル化学の対象は、従来、最大で4次元程度に留まった。本論文では、材料の並列調製・評価のためのハイスループット実験技術と、最適化のための遺伝的アルゴリズムを連動させるコンビナトリアル化学アプローチの確立を目的とした。

第二章では、透明プラスチックの光劣化に伴う黄変抑制のための安定化剤配合の探索を行った。具体的には、マイクロプレート上にキャスト成形した288検体をマイクロプレートごと光照射し、劣化をプレートリーダーで検出する、所謂マイクロプレート法を考案し、安定化剤配合の評価に係るスループットを劇的に改善することに成功した。その上で、アモルファスポリスチレンの黄変抑制に関して、24個の市販安定化剤ライブラリから10個を選ぶ配合探索を実施し、最終的に市販安定化剤の性能を5倍以上上回る新規配合の発見に至った。さらに、探索の過程で獲得した大規模なデータを分析し、劣化抑制メカニズムの異なる安定化剤や、同一メカニズムでも相補的な物性を有する安定化剤の間に相乗作用が働くこと、配合内に相乗的な組み合わせを出来る限り多く含めることが高性能の鍵であることを明らかにした。特に、相乗効果のある組み合わせを掛け合わせることで、最も相乗効果の高い組み合わせ厳選する従来戦略を顕著に上回る事実を初めて示した。

第三章では、最大16担持元素から成る多元系低温ドライリフォーミング触媒の探索を行い、同様な方法論が触媒開発においても有効であることを示した。特に、高性能触媒の設計には、主活性元素であるNiやPdと、これらの分散性・接合性・耐久性を改善する種々の助元素を主成分とすること、逆にこれらの働きを阻害する元素を排除することが肝要であることがわかった。

以上、本論文は、ハイスループット実験技術と遺伝的アルゴリズムの連動によるコンビナトリアル化学アプローチを確立し、10次元を超えるような大規模な材料探索と新しい材料設計指針の抽出を持ってその有効性を実証した。関連分野への貢献は極めて大きく、博士(マテリアルサイエンス)の学位論文として十分価値あるものと認めた。