JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	元素置換戦略に基づく系統的触媒開発のための触媒インフォマティクス
Author(s)	中野渡, 淳
Citation	
Issue Date	2024-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/19073
Rights	
Description	Superviser: 谷池 俊明, 先端科学技術研究科, 博士

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

氏　　名	中野渡　　淳		
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 578 号		
学位授与年月日	令和 6 年 3 月 22 日		
論文題目	Catalyst Informatics Based on Element Substitution Strategies for Systematic Catalyst Development		
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
	DAM, Hieu Chi	同	教授
	西村俊	同	准教授
	上田純平	同	准教授
	髙橋啓介	北海道大学	教授

論文の内容の要旨

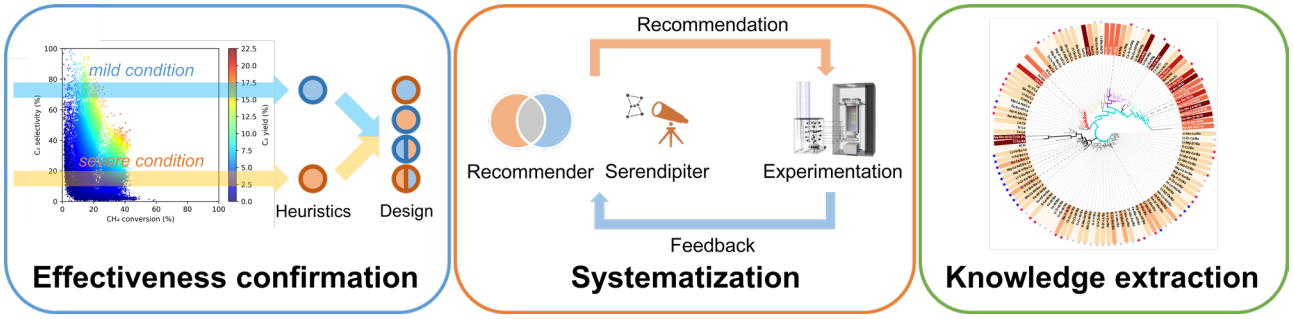
Solid catalysts are crucial in industry for producing a diverse range of chemical compounds. However, their working mechanisms are complex, influenced by many variables across different spatial and temporal scales. This has prevented rational catalyst design based on researchers' understanding; historically, most practical catalysts have been developed through empirical trials and errors, often accompanied by serendipitous discoveries. However, the traditional trial-and-error method of catalyst development is essentially ad hoc and cost intensive. In this thesis, I attempted to systematize catalyst discoveries based on a strategy of elemental substitution in a data-driven manner, aiming at establishing a reproducible and generalizable method for discovering high-performance catalysts. In doing so, a catalyst dataset featured with both high quality and high quantity was essential. A dataset for oxidative coupling of methane, previously acquired by us through high-throughput experimentation, was adopted as a training dataset [1]. The same experimental system was also used to validate concepts for individual chapters.

In **Chapter 2**, combinatorial rules for superior methane conversion under mild conditions and those for suppressing deep oxidation under severe conditions were extracted from the training data. These rules were successfully combined to design novel OCM catalysts. Key findings include temperature-dependent catalyst design guidelines, the importance of support properties, and the effectiveness of mixed supports like La_2O_3 and BaO. This chapter validated the effectiveness of catalyst design based on combinations of catalyst components.

In **Chapter 3**, to systematize catalyst discovery based on component combinations, an adaptive sampling loop has been designed with implementing a catalyst recommender system which can estimate catalyst performance through the substitution of component combinations. The system is based on the evidence theory, a mathematical framework to quantify the certainty of a hypothesis by combining multiple pieces of evidence and capable of managing uncertainties. It recommends catalysts according to the degree of belief that the catalyst is good or uncertain, which is equal to controlling the exploration/exploitation trade-off. The adaptive sampling led to the discovery of various high-performing catalysts. Moreover, by finding discernible patterns within serendipitous catalysts (unexpectedly high-performing catalysts), a catalyst serendipiter system was developed. The serendipiter system was designed to predict the occurrence of serendipity based on catalyst compositions and prediction outcomes from various classifiers, working in tandem with the recommender system. The system was exploited to induce serendipitous catalysts.

In **Chapter 4**, a method to visually extract the combinatorial knowledge for catalyst design from a set of data

with different backgrounds was introduced based on a phylogenetic tree. The developed method was not only able to visualize the history of catalyst development in OCM, but also clarified a significant contribution of my research (Chapters 2 and 3) to widen the scope of high-performing catalysts. Moreover, these visualizations highlighted that each catalyst system follows different rules of elemental combinations to achieve good performance. The insights gained from this analysis were exploited to design promising mixed oxide-based catalysts, a category that has been relatively underexplored in the history of OCM catalyst development.



In this thesis, systematic and efficient methods for data-driven catalyst discovery based on combinatorial rules have been developed. Due to the un-necessity of specific descriptors, the methods are generally applicable to other catalysis, and any cases where materials are developed from combinations of components.

[1] T. N. Nguyen, S. Nakanowatari, T. P. N. Tran, A. Thakur, L. Takahashi, K. Takahashi, T. Taniike. *ACS Catal.*, **2021**, 11, 3, 1797–1809.

Keywords: Catalyst informatics, Catalyst discovery, Combinatorial rule, Substitution of component combination, Oxidative coupling of methane

論文審査の結果の要旨

本論文は、固体触媒材料の探索を、組み合わせ則に基づく触媒インフォマティクスによって系統化・効率化する方法論の開発に関する研究結果をまとめたものである。

固体触媒は現代工業において不可欠な材料であるが、その構造と作用機構は極めて複雑であり、その開発は長らく経験的な試行錯誤と偶発的な発見に多くを頼ってきた。本論文では、このような触媒開発を体系化するための触媒インフォマティクス技術を開発し、メタンの酸化的カップリング（OCM）を対象に実験実証した。なお訓練データには、当研究室が過去に自製したハイスループット実験（HTE）データを用い、実証実験にも同一の HTE 実験系を使用した。

第二章では OCM の特徴であるメタンの転換率とエチレンの選択性のトレードオフに着目し、組み合わせ則を応用した触媒設計の有効性を実証した。OCM の反応物であるメタンは生成物であるエチレンよりも高い化学的安定性を持っている。そのため、反応温度や酸化剤濃度を上げるとメタン転換が促進される反面、エチレンの二次酸化などの副反応が起こりやすくなる。そこで、訓練データを分析し、穏やかな条件下でメタン転化を促進する設計則、厳しい条件下で二次酸化を抑制する設計則をそれぞれ抽出した。これらのルールを組み合わせることで、担体混合に基づく高性能触媒を開発することに成功した。

第三章では、組み合わせ則に基づく触媒探索を体系化するために、組み合わせ間の類似性と置換に基づき触媒性能を推定する触媒推薦システムを開発した。これは証拠理論にベースとしており、探索（外挿）と活用（内挿）をバランスした触媒推薦を行うことができる。適応的サンプリングを行うことでシステムを訓練しつつ、その過程で様々な高性能触媒を発見することに成功した。さらに、予想外に高性能を発揮した触媒（セレンディピティ）の中から識別可能なパターンを発見することで、触媒セレンディピターシ

ステムを開発した。このシステムを利用して、セレンディピティを高確率で誘発することにも成功した。

第四章では、文献データと自製データのように、異なる背景を持つデータセットを統合し、触媒設計のための組み合わせ則を可視的に抽出する手法：触媒系統樹を開発した。触媒系統樹は、OCM の触媒開発史を可視化しただけでなく、本論文（第 2、3 章）の成果が高性能触媒の裾野を大きく広げた事実を明らかにした。さらに、未開拓な要望領域を可視的に見出し、複合酸化物をベースとした高性能触媒を開発するに至った。

本論文はデータ駆動型の体系的な触媒探索法を提案し、その有効性を実験実証した。これらの方法は特定の記述子に依存せず、非常に汎用性が高く、関連分野への貢献は極めて大きい。よって、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。