

## コンビナトリアル触媒調製に対する進化的アプローチ

○竹原直美, 石若裕子, 小林淳哉 (函館高専)

### 要旨

触媒調製にコンビナトリアルケミストリ (組合せ化学) を取り入れることにより、迅速かつ大量の反応性評価を可能にする。触媒成分とその濃度の方向付けに、遺伝的アルゴリズムを適用し、最適な触媒活性を得るためのシミュレーションを行う。シミュレーションの結果は更なる触媒の改良にフィードバックする。

### 1. はじめに

現在触媒成分の組合せやその最適な濃度を求めることは、専門家の経験や勘に大きく頼っているため効率が悪く「じゅうたん爆撃」にも例えられてきた。本研究では、遺伝的アルゴリズムを触媒成分の組合せや濃度に適用することにより、経験や勘に頼らずに、高活性な触媒を調製する新たな手法を提案する。これは今日の触媒開発方法とは一線を画すものであり、これまでは予想もできなかった成分を組合せた触媒の発見が大いに期待できる。触媒調製の学習に GA を採用し、GA の評価関数の学習に ANN を用いる。

### 2. 背景

コンビナトリアルケミストリに遺伝的アルゴリズムを取り入れた研究<sup>3)</sup>では触媒反応の評価関数は発見されておらず、経験や勘に頼らなければならない (任意) という問題点があった。そのため今回は評価関数そのものを ANN によって学習するという手法を提案する。

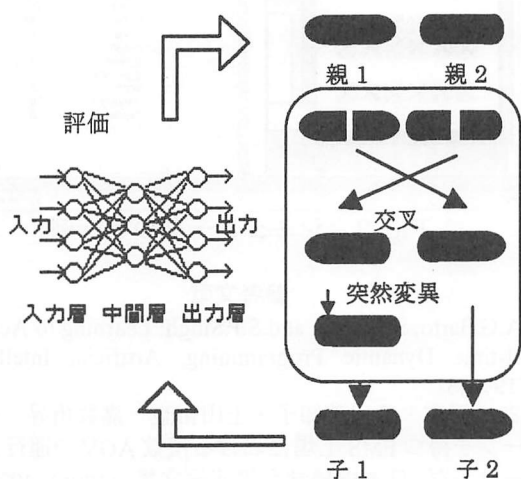


Fig.1 System architecture

### 3. 手法

触媒反応の実測値より ANN で GA に用いる評価関数の学習を行う。学習後の ANN を用いて GA により選択性および収率の高い触媒組成の組合せの準最適解を求める。本研究におけるシステム構成図を Fig.1 に示す。

#### 3.1 ANN

本研究で用いる ANN のネットワーク構成は入力層・出力層・中間層がそれぞれ1つの階層型ネットワークとする。荷重の学習に誤差逆伝播法 (BP: Back Propagation) を採用する。また、入力は触媒組成それぞれのモル濃度とし、出力は触媒の収率とする。ここでモル濃度とは全成分のモル数の和に対する成分元素のモル数の割合 (%) であり、収率とは原料のうち目的の物質に変化した割合 (%) である。

#### 3.2 遺伝的アルゴリズム (GA: Genetic Algorithm)

遺伝子として W, Zr, O の量をそれぞれ 15 ビットとした  $3 \times 15$  の配列を持ち、交叉は以下の3つの方法から1つをランダムに選択する。

- (1) 縦交叉: 2つの遺伝子間で縦1列を入れ換える。
- (2) 横交叉: 2つの遺伝子間で横1列を入れ換える。
- (3) BOX 交叉: 2つの遺伝子間で BOX 状の領域について入れ換える。

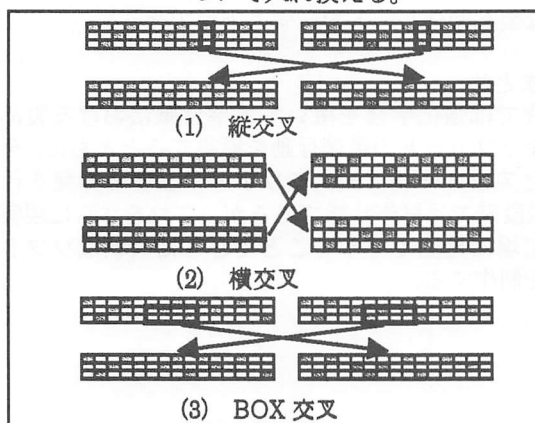


Fig.2 crossover method

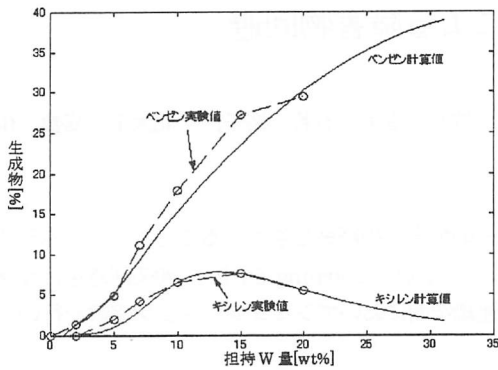


Fig.3 comparison between the observed yields of benzene and xylene and output of ANN

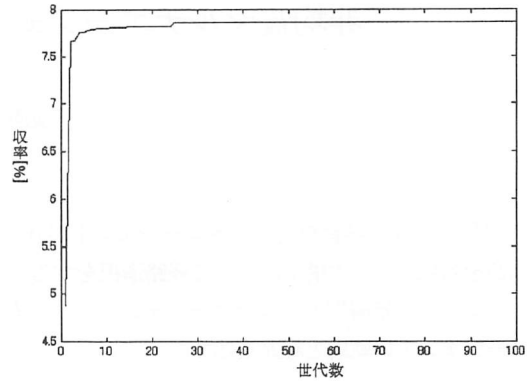


Fig.4 fitness curve of GA

## 4. 実験及び実験結果

### 4.1 ANNによる評価関数の学習

触媒反応は 320℃のトルエンの不均化反応を用いた (トルエン→ベンゼン+キシレン)。用いた触媒は酸化ジルコニウム  $ZrO_2$  にタングステン W を担持したものである。入力は W、Zr、O それぞれのモル濃度となる。学習に用いた教師データは6つの実測値で、学習率  $\eta=0.2$  とした。出力は、入力に対して得られるベンゼン、キシレンの収率とし、全パターンでの2乗誤差が 0.0025 を下回った場合を終了条件とした。

Fig.3 に実際の触媒反応実験により得られたデータと ANN の出力結果より得られたデータを示す。

### 4.2 GAによる触媒組成学習

触媒組成のモル濃度を算出し ANN へ入力することで評価値を求めた。個体数は 100、世代数は 1000、突然変異確率は 5% とした。また評価値としてキシレンの収率を用いた。

Table 1 に 1000 世代における最もキシレンの収率の良かった触媒組成のモル濃度とベンゼン・キシレンの収率を示す。Fig.4 に GA における学習曲線を示す。本実験では 30 世代程度で収束したため、グラフには 100 世代までの結果を示す。

Table.1 result after learning of GA

W	3.09866 [mol%]
Zr	33.80356 [mol%]
O	63.09778 [mol%]
ベンゼンの収率	21.19602 [%]
キシレンの収率	7.86559 [%]

## 5. おわりに

コンビナトリアル触媒調製に GA を採用し、GA の評価関数に ANN を用いてシミュレーション実験を行なった。その結果、ベンゼン・キシレン共に計算値が実測値とほぼ同じ曲線となりこの手法が有効である事が確認された。また、GA によって得られたキシレンの収率が実測値のキシレン収率の最大値とほぼ同じになることから、準最適となる収益を得るための W、Zr、O のモル濃度を学習することが確認できたと言える。今後新たな触媒については、この手法によってある程度の実験を行うことで、その組合せの特性が得られることが期待される。

## 謝辞

触媒反応の実験結果を提供いただいた函館高専物質工学科日野誠教授に感謝いたします。

## 参考文献

- [1] 山田祐介、小林哲彦、水野哲孝：コンビナトリアルケミストリにおける個体触媒パラレル調製と人工知能利用、触媒学会誌 Vol.43 No.5、pp311-315、2001
- [2] 小俣光司、梅垣哲士、石黒群司、山田宗慶：遺伝的アルゴリズムを用いたメタノール合成用 Cu-Zn-Al 酸化物触媒組成の最適化、石油学会誌 Vol.44 No.5、pp327-331、2001
- [3] D.Wolf、O.V.Buyevskaya、M.Baerns：An evolutionary approach in the combinatorial selection and optimization of catalytic materials、Applied Catalysis A：General 200、ELSEVIER、pp63-77、2000
- [4] 坂和正敏：ニューロコンピューティング入門、森北出版株式会社、1997
- [5] 坂和正敏、田中雅博：遺伝的アルゴリズム、株式会社朝倉書店、1995