

函館高専 ○松井 春美、石若 裕子、小林 淳哉、はこだて未来大学 小西 修

要 旨

固体触媒開発には長期間を要する。触媒反応の実測値を用いて評価関数を求め、免疫アルゴリズムにより次に調製する触媒を提案する。この操作を繰り返すことで、効率よく触媒を探索することが可能となる。

1. 目的・意義

現在、目的とする反応に有効な固体触媒を開発するためには、長期間を必要とする。開発者の経験と知識をもとに任意の元素から成る触媒を調製し、繰り返し反応試験を行っていく中で、有効な触媒を開発していくためである。そこで、免疫アルゴリズム (IA) を取り入れたコンビナトリアル・ケミストリーを提案する。調製する触媒を IA によって提示することで、開発の効率化の実現をめざす。

2. 背景

触媒は、少量存在することで特定の反応を促進する一方で、自身は反応前後でほとんど変化しない物質である (Fig.1)。目的とする反応に有効な触媒であるかどうかを判断する要素には、選択率、転化率、収率がある。選択率とは反応生成物中の目的とする物質の割合であり、転化率は原料の変化率である。収率は選択率×転化率で算出され、触媒反応においては特に収率を向上させることが重要である。

触媒は固体あるいは液体物質である。対象が主に液体である医薬品を開発する分野では、近年コンビナトリアル・ケミストリーという手法が多く採用されている。コンビナトリアル・ケミストリーとは、複数の化合物を様々に組み合わせた物質を一度に多数合成し、その中から目的とする反応に有効な物質を探索する手法である。迅速に合成した物質を評価できる装置 (ハイ・スループ

ット・スクリーニング装置 : HTS 装置) を適用することで医薬品開発の効率化が実現している。

固体触媒開発においてもコンビナトリアル・ケミストリーを適用し、HTS 装置を用いることで、開発に要する期間を短縮することが可能になると予想できる。また、触媒調製ならびに触媒反応試験には約一日を必要することから、進化計算を効果的に用いて次に調製する触媒を探索することで、効率化が実現する。

本研究では、触媒反応の実測値を用いて評価関数を求め、IA により次に調製すべき触媒組成を探索する手法について検討した。

3. 方法

触媒反応を的確にシミュレートできる反応モデルは存在しない。そこで、触媒反応の実測値を用いて、人工ニューラルネットワーク (ANN) により評価関数を求める。その評価関数を抗原として IA を適用し、触媒組成の最適化を行う (Fig.2) [1]。

3.1 触媒調製・反応試験

触媒反応のモデル反応として、メタノールの水蒸気改質反応 (メタノール+水→水素+二酸化炭素) を採用した。反応に用いた触媒は、酸化アルミニウム (Al₂O₃) に銅 (Cu) を担持させたものである。メタノール (CH₃OH) と水 (H₂O) を混合し気化させて触媒に導入し、得られた水素 (H₂) の選択率と収率により、触媒の反応性を評

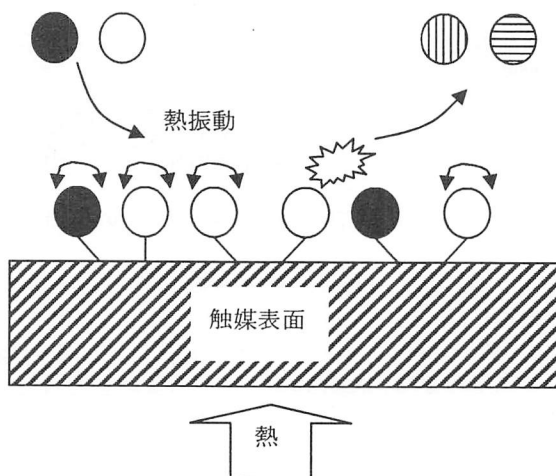


Fig.1 Schematic image of catalysis

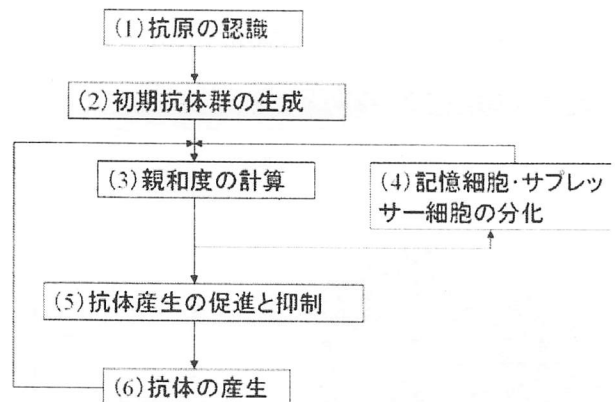


Fig.2 Flowchart of immune algorithm

価した。

3.2 ANNによる評価関数の学習

3.1で得られた結果をもとに、ANNにより評価関数を近似した。入力を触媒に含まれる銅とアルミニウムのモル分率、出力を水素の選択率と収率とする多層の階層型ニューラルネットワークを用いた。荷重の学習には誤差逆伝播法を採用した。

3.3 IAによる触媒組成探索

3.2で得られた関数を抗原として用いた。銅とアルミニウムのモル分率をそれぞれ10ビット、計20ビットの配列を持つ遺伝子型を一つの抗体とした。

抗体数を100、交叉確率を1.0、突然変異確率0.01とし、交叉操作には一点交叉、突然変異操作には任意の1ビットの反転を行った。世代数は200とした。

3.4 遺伝的アルゴリズム (GA) による触媒組成探索

3.2で得られた関数について、IAと同様にGAで触媒組成探索を行った。個体数は100、交叉確率を1.0、突然変異確率を0.01とし、交叉操作には一点交叉、突然変異操作には任意の1ビットの反転を行った。世代数は200とした。

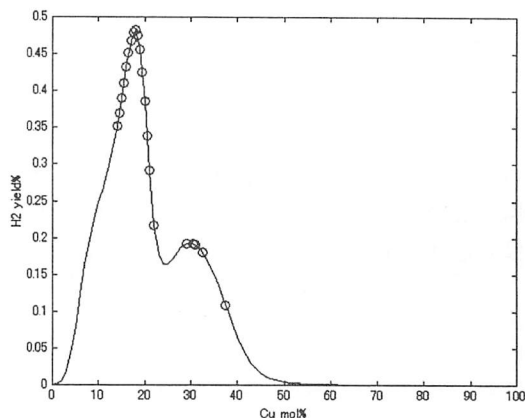


Fig.3 IA results

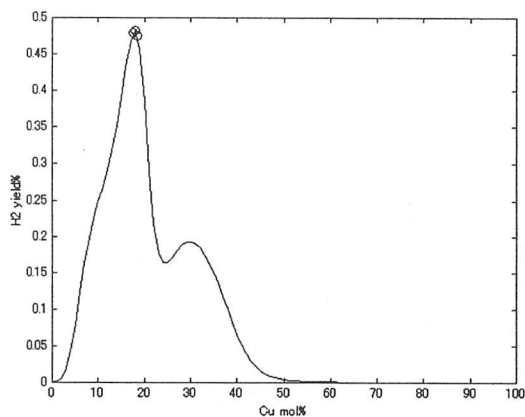


Fig.4 GA results

4. 結果と今後の課題

Fig.3にIAによって200世代目までに生成した記憶細胞の親和度を丸で示した。Fig.4に示したGAによる結果が、200世代目で一つのピークに集まっているのと比較して、IAの結果は複数のピークに分散している。サプレッサー細胞による抗体産生の抑制が効果的に行われていなかったためか、ピーク間にも記憶細胞が出現してしまっており、今後改良の余地があるが、広範囲で探索できることを示している。

これまで固体触媒にコンビナトリアル・ケミストリーを適用した報告では、触媒探索にGAを用いている^{[2]-[4]}。しかしGAは、本研究で得られた評価関数のように複数のピークを持つ関数に対して、一つのピークに集中してしまう傾向がある。実測値のデータが少ない固体触媒探索の初期段階では、特に、最大値のみではなく極大値に関しても最適な組成が含まれている可能性がある。したがって、多峰性関数最適化に有効なIAを適用することは、触媒探索に有効である。

IAによって得られた結果をフィードバックして、触媒反応試験を行うことで、触媒探索に要する時間の短縮が実現できると考えている。

参考文献

- [1] 石田好輝、平山博史、藤田博之、石黒章夫、森一之：免疫型システムとその応用—免疫系に学んだ知能システム—、コロナ社、1998
- [2] 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
- [3] 小俣光司、梅垣哲士、石黒郡司、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
- [4] Kohji OMATA、Tetsuo UMEGAKI、Yusuke WATANABE、Noritoshi NUKUI、and Muneyoshi YAMADA：Design of Cu-Zn-Al-Sc Oxide Catalyst for Methanol Synthesis Using Genetic Algorithm Based on Radial Basis Function Network as the Evaluation Function、J.Jpn.Petrol.Inst.、Vol.46 No.3、pp189-195、2003