

機械学習による NO 直接分解反応に適した材料予測

Prediction of Materials for direct NO decomposition reaction by Machine Learning

コベルコ科研¹ °大川 哲也¹, 山下 岳史¹, 高岸 洋一¹

Kobelco Res. Inst.¹, °Tetsuya Ohkawa¹, Takeshi Yamashita¹, Yoichi Takagishi¹

E-mail: ohkawa.tetsuya@kki.kobelco.com

1. 背景・目的 窒素酸化物(NO_x)は化石燃料の燃焼によって発生し、排出量低減は環境汚染や地球温暖化の観点から課題である。アンモニアや尿素を還元剤として NO_x を低減する選択的接触還元法があるが、還元剤を必要としない直接分解反応 ($\text{NO} \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}_2$) が研究されている。白金族金属が用いられることが多く、白金族金属使用量の削減や代替材料が求められている。本稿では、機械学習を用いて材料に求める性能と材料基礎物性のデータを関連付けて学習モデルを構築し、NO 分解直接反応に適した材料を予測した。

2. 準備・方法 NO 直接分解反応は幾つかの素反応から成り立つが、ここでは NO 解離吸着が律速段階と仮定し[1]、金属クラスター上でそれが起こるとして検討した。材料に求める性能は NO 解離吸着に必要なエネルギー E_a であり(図 1)、第一原理計算の結果を用いて Brønsted-Evans-Polanyi 則により推定した(ただし、計算が収束したものに限る)。金属クラスターは 4 原子の四面体と仮定し、3 原子(底面)と 1 原子(頂点)の元素を 43 候補(Mg, Cu, Pt など)の中から全通り選択した。材料の基礎物性は文献[2]を参照し、具体的には電気陰性度、イオン化ポテンシャル、融解エンタルピー、密度である。推定された E_a と材料の基礎物性を関連付ける順方向モデル(ニューラルネットワークモデル)を構築後、逆解析(ベイズ最適化)により E_a が低い材料の組み合わせを予測した。

3. 結果 順方向モデルの汎化性能を図 2 に示す。第一原理計算により推定された E_a (横軸)と、学習モデルにより予測された E_a (縦軸)の差が小さく、過剰に学習していないことが分かる。本モデルは、 E_a が低い(高い)ほど周期表左側(右側)の元素が良く使われる傾向であった。これは、イオン化ポテンシャルの傾向や、金属クラスターから NO に電子が供与されるほど NO 吸着が強かつ NO 結合距離が伸長されることから考えると、傾向が一致している。このような予測性能を持った学習モデルによって、順方向モデルと逆解析の結果を考慮すると、 E_a が低い材料候補は Nb (ニオブ) と W (タングステン) の組み合わせであると予測された ($E_a = -1.316[\text{eV}]$)。今後、予測された材料を試作し、機械学習予測の傾向について検証予定である。

参考文献

[1] 福田ほか, 第 19 回理論化学討論会, 3B07 (2016)

[2] D. R. Lide, ed., CRC Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press, Boca Raton, FL, 2005.

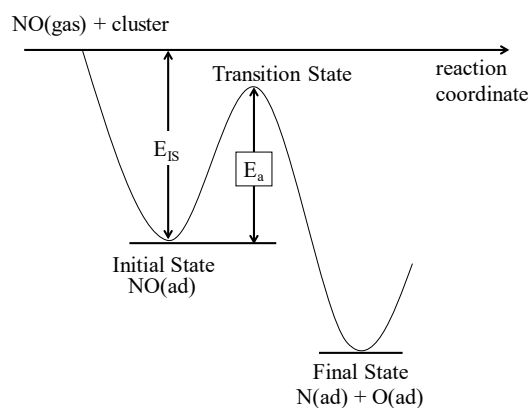


Fig1. Energy diagram in NO dissociative adsorption.

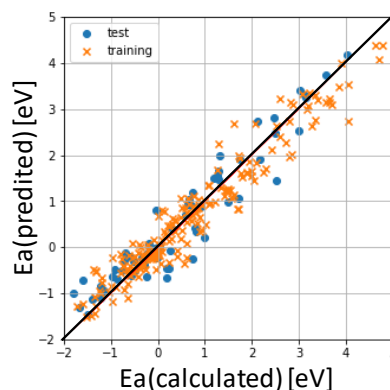


Fig2. Predictive performance of NO activation energies by Machine Learning model (forward).