[Technical Report]

Optimization of Cu-Zn-Al Oxide Catalyst for Methanol Synthesis Using Genetic Algorithm and Neural Network as Its Evaluation Function

Kohji OMATA*, Tetsuo UMEGAKI, Yuhsuke WATANABE, and Muneyoshi YAMADA

Dept. of Applied Chemistry, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Aoba 07, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, JAPAN

(Received December 7, 2001)

Genetic algorithm was applied to optimize the Cu/Zn/Al ratio of mixed oxide catalyst for methanol synthesis from syngas. A layered neural network was used instead of experiments to evaluate the “fitness” of the catalyst code. This procedure eliminated laborious steps, such as catalyst preparation and activity testing, from the optimization loop. The calculated activity (STY) was almost identical to the original one and could be used as an evaluation function in the genetic algorithm program. The combination of catalyst design by genetic algorithm and activity evaluation by a layered neural network is a promising method for highly efficient catalyst screening.

Keywords

Genetic algorithm, Neural network, Catalyst optimization, Combinatorial chemistry, Mixed oxide catalyst, Methanol synthesis

1. 緒 言

触媒開発の効率向上の手法として combinatorial catalysis¹⁾ が注目されている。著者らも高圧 HTS 反応器²⁾、自動触媒調製、遺伝的アルゴリズム (以下、GA)^{3),*1)} を組み合わせた手法を開発しており、メタノール合成用 Cu 系触媒の組成最適化に適用した例を報告した⁴⁾。この手法では GA による触媒組成の指定、それに基づく触媒調製、高圧 HTS 反応器でのパラレル活性評価、その結果の GA へのフィードバック・触媒組成改良を繰り返す。多くの各遺伝子の適合度を求めるために、多くの触媒調製・活性測定が必須であることから、触媒調製の迅速化・自動化、活性測定のパラレル化を図っているが、それでもやはりこれらのステップに多大の労力と時間が必要であり、実験の律速となっている。

メタノール合成用 Cu-Zn-Al 酸化物触媒の組成最適化の際には、GA プログラムの動作チェックのために、触媒活性 (STY) を Cu, Zn, Al 組成の関数としてシミュレーションし、その式を用いて各遺伝子の適合度を計算した³⁾。これによりプログラムが局所解にとらわれずに関数の最大値を見出したかどうか容易に判定できる。この STY 計算のための関数は、ある程度実験結果を反映するように定めたが、さらに精度よく実験結果を反映し、実験を行っていない部分における推定値の信頼性が高ければ、実験を代替することも可能であろう。

このような関数を求める手法として汎化能力の高いニューラルネットワークに注目した。本研究で用いた階層型ニューラル

Fig. 1 Multi-layered Neural Network

ネットワークでは Fig. 1 のような、入力層・中間層・出力層からなる階層構造が作られている。初期の階層型ニューラルネットワークは線形分離不能な問題が認識できないという欠点があったが誤差逆伝搬学習法によりこの欠点が克服され応用の範囲が広がった。

階層型ニューラルネットワーク (以下、NN) の触媒研究への適用については、服部、鬼頭らの先駆的な仕事がある⁵⁾。複合酸化物の塩基性推定、ブタン酸化活性推定、エチルベンゼンの酸化的脱水素反応の選択性推定などに NN を適用し、触媒の構成要素の物性値と触媒特性を結び付ける試みを行っている。

* To whom correspondence should be addressed.

* E-mail: omata@erec.che.tohoku.ac.jp

*1) Excel (Microsoft 社製表計算ソフト) で作成した GA プログラムを <http://soukei.net.che.tohoku.ac.jp/combicat.htm> にて公開している。

Values in this figure are STY (g-MeOH/kg-cat/h).

Fig. 2 Contour Line of Simulated STY

また、これとは異なる方向性の研究として、実験データを整理、一般化し、実験を行っていない条件下での触媒活性を推定するツールとしてNNを用いる報告も見られる^{6)~9)}。さらに、NNの適用範囲を絞った研究として、触媒組成の最適化が行われている¹⁰⁾。Houらは、触媒の組成 (P, K, Cr, Mo, V, $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ 比) とそのプロパンアンモ酸化活性・選択性の関係を示す実験結果 23 組を用いて、NNを構築した後最適化プログラムにより組成を最適化し、高活性・選択性触媒を得ている^{10)(a)}。最適化プログラムとしてGAを利用してNNと組み合わせた例は、触媒研究では報告がないが、ガラスの設計に利用している報告がある¹¹⁾。

NNでは、実際のデータ (たとえば触媒組成) を入力層より入力し、出力層からの出力 (たとえば活性) が実験結果と一致するようにユニットにおける関数のパラメーターならびにユニット間の結合の強さを調整する。この調整のための入力-出力の実験データの組を学習データ、調整の過程を学習と称するが、学習が終了したNNでは、任意の入力に対する出力が得られるため、これを一種の関数とみなすことができる。学習が効率良くまた片寄りなく行われるには学習データの入力部分の分散性が良いことが必要である。この観点から、GAプログラムで指定される第一世代のデータはランダムに決定されるため、学習データとして有効であると考えられる。これまでの実験手法では、GAによる触媒組成の指定→触媒調製→パラレル活性評価→GAへのフィードバックという繰り返しにより触媒組成の最適化を行っていたが、実験によるNNの学習が済んでしまえば、最適化の手順は、GAによる触媒組成の指定→NNによる活性評価→GAへのフィードバックとなり、触媒調製・活性試験を省くことができる。本稿ではこの手法の有効性を確認するためにシミュレーションを行った結果を報告する。

Fig. 3 Training Data

2. 計算方法

触媒はCu-Zn-Alの三元系とし、メタノール合成活性はCu組成とZn組成の関数として表した。本来は、最初にGAにより指定された第一世代の触媒組成と、それに基づき調製した触媒の活性測定結果を学習データとするが、本手法により最適解が正しく求まっているか判定するために、触媒の活性はFig. 2の模擬活性を用いて計算で求めた。模擬活性であれば活性の最高値とそれを与える触媒組成が既知であるため、NNとGAにより求めた解の有効性の判定が容易である。前報³⁾では既往の結果と照合しやすいように、活性を $\text{Cu}/(\text{Cu} + \text{Zn})$ 比、 $\text{Al}/(\text{Cu} + \text{Zn} + \text{Al})$ 比の関数として表したが、学習データとしてそのように都合良くアレンジして用いることは一般的には困難であるので、今回の計算ではCu組成とZn組成を入力データとした。関数そのものは前報のものと同値である。GAに基づく最適化プログラムはExcelにより作成した³⁾ので、NNはExcelにニューラルネットワーク構築ルーチンを付け加えるマクロパッケージ (Neuralyst, Cheshire Engineering Co.) を用いて構築した。ニューラルネットのパターンとして、入力層は2ユニット (Cu, Zn 組成を入力)、出力層は1ユニット (STYを出力) と固定し、96組のデータを用いて誤差逆伝搬学習法により学習した。学習回数は30,000回とし、全ての学習データと推定値との誤差が1.5%以内になるような中間層の構成を探ったところ、中間層が1~2層では収束しなかったため、6, 4, 2ユニットの構成の3層としたところで学習が速やかに進行し、比較的良好な結果を与えたので、この構成を採用した (Fig. 1)。このときに収束に要した時間はCPUにPowerPC G3 (500 MHz) を搭載したiBook (Apple社製) で2分50秒間であった。

3. 結果と考察

誤差逆伝搬学習法によるNNの学習に用いた触媒組成とその活性をFig. 3に示す。学習が十分に進めば、任意の触媒組成の入力に対して活性が精度よく計算されるので、このNNをGAプログラムの評価関数として用い、触媒組成の最適化を進めた。Fig. 4に組成が収束していく様子を示す。最高値は第7世代で384 g-MeOH/kg-cat/hに達した。このときの触媒組成は

Results in the 1st generation and 30th generation are compared in (f).

Fig. 4 Convergence of Catalyst Component

$\text{Cu}_{0.54}\text{Zn}_{0.35}\text{Al}_{0.11}\text{O}_{1.06}$ であった。**Fig. 2**の模擬活性における最高活性は $\text{Cu}_{0.56}\text{Zn}_{0.32}\text{Al}_{0.12}\text{O}_{1.06}$ が示す400 g-MeOH/kg-cat/hなので、活性は若干低いものの、組成はほぼ正しく予想できたといえる。また、**Fig. 3**の学習データ(**Fig. 4 (f)**●)と同じプロットを示す)には最高活性を与える組成ならびにその周辺のデータ、たとえば第30世代の組成(**Fig. 4 (f)**×)が全く含まれていないにもかかわらず、この精度で最適組成を予想できたことはNNによる推定の適用範囲が広いことを示している。

NNにより任意の組成の触媒活性が計算可能であれば、GAは不要に思われるが、直感的に最大値が推定できるのは入力する独立変数が2個で、たとえば**Fig. 2**のような等高線が描ける場合に限られよう。独立変数が3個以上の場合はなんらかの最適化プログラムが必要となるが、本報告で示されたように、GAとNNは相互補完的な特徴があり、有用な組合せであると思われる。また、NNの学習用のデータを測定するのには従来

の反応装置では時間がかかるため、なんらかの平行触媒調製、平行活性測定、いわゆるコンビナトリアルケミストリー(CC)とハイスループットスクリーニング(HTS)の手法が必要となる。これら、GA、NN、CC、HTSを有機的に結び付けることにより触媒の開発効率が大幅に向上することが期待される。

4. 結 論

GAにおける評価関数にNNを用いることを検討した。最初に、たとえばGAにおける第一世代のようにランダムに組成を指定した触媒の活性測定を行えば、これを使ってNNの学習を行い、あとはこのNNを評価関数として用いてGAの世代交代を繰り返すことで最適化を進めることが可能であることが示された。

謝 辞

本研究は、日本学術振興会未来開拓学術研究推進事業における研究プロジェクト「低環境負荷型高品位輸送用燃料の合成」(JSPS-RFTF98P01001)によっている。記して謝意を表す。

References

- (a) Senkan, S., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **40**, 312 (2001).
(b) Jandeleit, B., Schaefer, D. J., Powers, T. S., Turner, H. W., Weinberg, W. H., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **38**, 2494 (1999).
- Omata, K., Ishiguro, G., Yamada, M., *Sekiyu Gakkaishi (J. Jpn. Petrol. Inst.)*, **43**, (4), 317 (2000).
- Omata, K., Umegaki, T., Ishiguro, G., Yamada, M., *Sekiyu Gakkaishi (J. Jpn. Petrol. Inst.)*, **44**, (5), 327 (2001).
- Omata, K., Umegaki, T., Watanabe, Y., Ishiguro, G., Yamada, M., *Shokubai*, **43**, (6), 379 (2001).
- Hattori, T., Kito, S., *Catalysis Today*, **23**, 347 (1995).
- Sasaki, M., Hamada, H., Kintaichi, Y., Ito, T., *Appl. Catal., A: General*, **132**, 261 (1995).
- Kikukawa, N., Makino, M., *Shigen to Sozai*, **110**, 479 (1994).
- Berger, D., Landau, M. V., Herskowitz, M., Boger, Z., *Fuel*, **75**, (7), 907 (1996).
- Sharma, B. K., Sharma, M. P., Roy, S. K., Kumar, S., Tendulkar, S. B., Tambe, S. S., Kulkarni, B. D., *Fuel*, **77**, (15), 1763 (1998).
- (a) Hou, Z.-Y., Dai, Q., Wu, X.-Q., Chen, G.-T., *Appl. Catal., A: General*, **161**, 183 (1997).
(b) Huang, K., Chen, F.-Q., Lü, D.-W., *Appl. Catal., A: General*, **219**, 61 (2001).
- Yamamoto, H., 86th CATSJ Meeting Abstracts, Catal. Soc. of Jpn., 2000, 4D15.

要 旨

遺伝的アルゴリズムとその評価関数としてのニューラルネットワークを用いた
メタノール合成用 Cu-Zn-Al 酸化物触媒組成最適化

小俣 光司, 梅垣 哲士, 渡辺 裕輔, 山田 宗慶

東北大学大学院工学研究科, 980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 07

メタノール合成活性の向上を目的とし、最適化手法として遺伝的アルゴリズム (GA) を用いて Cu-Zn-Al 酸化物触媒の組成の最適化を試みた。通常、最適化は、GA による触媒組成の指定→触媒調製・活性試験→GA へのフィードバック、というステップにより進行するが、活性を階層型ニューラルネットワ

ークにより求めた場合、触媒調製・活性試験のステップが不要となり触媒開発効率の向上が期待された。階層型ニューラルネットワークによる推定値は真の値に近く、遺伝的アルゴリズムにおける評価関数として十分利用できることが分かった。

.....