

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

二酸化炭素の分離回収に適した分離材料の探索  
Prediction of separation materials suitable for CO<sub>2</sub> capture藤井 達也  
Tatsuya Fujii

産業技術総合研究所化学プロセス研究部門

Research Institute for Chemical Process Technology, National Institute of Advanced Industrial Science  
and Technology (AIST)<https://unit.aist.go.jp/cpt/>

CO<sub>2</sub> 分離回収技術を省エネルギー化できる CO<sub>2</sub> 化学吸収液の性能を予測するモデルの構築に取り組んだ。量子化学計算により、化学吸収液に用いられる有機化合物の物性を計算し、化学吸収液に用いられる有機化合物の特徴量を獲得した。既往の化学吸収液に関する研究データを収集して、プロセスパラメータ(温度、圧力、濃度等)と有機化合物の関係をデータセット化し、既存のソフトウェアで算出した特徴量と、量子化学計算で獲得した特徴量を基に、予測モデルを構築した。モデルの性能を文献データにより検証したところ、既存の有機化合物で構成される化学吸収液については、高精度(RMSE = 0.1 未満)で CO<sub>2</sub> 吸収量を予測できた。一方で、モデルに含まれない有機化合物を含む吸収液の性能を予測することで汎化性能を調べたところ、予測精度は低下(RMSE = 0.2 程度)した。汎化性能の面においては予測モデルの改良やさらなる特徴量の探索が必要と考える。

Predicting method of the performance of CO<sub>2</sub> absorbent by machine learning was investigated. Some features for designing chemical absorption were obtained by quantum chemical calculation. References on the performance of absorbents were collected and the dataset describing the relation between amines, process parameters and performances. Predicting models were constructed using features calculated by the combination of an existing descriptor calculator quantum chemical calculation. The predicting performance was high (RMSE < 0.1) for absorbents consisting of existing amines. On the other hand, the performance was lower (RMSE = ca. 0.2) for amine solutions that were not included in the learning process. To improve the predicting performance, improvement of the modeling method and finding of new features should be needed.

**Keywords:** CO<sub>2</sub> 分離、化学吸収液、機械学習、量子化学計算、特徴量

## 背景と目的

地球温暖化問題の解決へ向けてカーボンニュートラルを実現するためには、CO<sub>2</sub> を省エネルギーに分離回収する技術が必須である。分離回収プロセスにおいて、CO<sub>2</sub> 分離材料はプロセス全体の省エネルギー性能を左右する重要な要素である。本利用課題では、CO<sub>2</sub> 分離回収技術を省エネルギー化できる CO<sub>2</sub> 化学吸収液の性能を、量子化学計算と機械学習の融合により予測するモデルの構築に取り組んだ。化学吸収液の CO<sub>2</sub> 吸収量は、吸収液を構成する塩基及び溶媒、塩基の組成、温度、CO<sub>2</sub> 分圧など数多くの因子に依存する。化学吸収液に関する従来型研究では、数多くの吸収液合成と性能試験のサイクルを回しており、開発に膨大な時間を要している。CO<sub>2</sub> 吸収量の予測モデルが確立されれば、試験数の低減など、化学吸収液の開発の加速化が期待できる。また、従来にない特徴量の発見による新規な

吸収液設計法への発展が期待される。そこで、本研究では、量子化学計算(Gaussian)と機械学習とを組み合わせ、前記因子を入力として CO<sub>2</sub> 吸収量を予測するモデルを構築することを目的とした。

本研究では、既往の化学吸収液に関する研究データを収集して、プロセスパラメータ(温度、圧力、濃度等)と有機化合物の関係をデータセット化した。また、プロセスパラメータ、既存の特徴量計算ソフトウェアによって得られた特徴量に加え、量子化学計算で得られた特徴量を組み合わせ、機械学習によって CO<sub>2</sub> 吸収量を予測するモデルを構築した。構築したモデルについて、既存の有機化合物で構成される化学吸収液、ならびに、モデルに含まれない有機化合物を含む吸収液の性能の予測精度について、検証を行った。

## 概要

CO<sub>2</sub> 化学吸収液として、アミン水溶液に着目し、アミン水溶液系の既往の文献を整理して、アミンを一種類、ないし二種類含む化学吸収液について、アミンの種類、その組成、温度、圧力に対する CO<sub>2</sub> 吸収量を整理しデータセット化した。44 種類のアミンについて、4099 点のデータからなるデータセットを構築した。この中から、物理吸収の影響が大きいと考えられる高圧領域を除き、1000 kPa 未満のデータを用いてモデルを構築した (3533 点)。

機械学習を行うにあたり、アミンを特徴量に変換する必要がある。本研究では、既存のソフトウェアである RDkit ならびに HSPiP を用いて、特徴量を算出した。また、44 種類のアミンについて、量子化学計算を行い、アミンの N 原子の電荷や、プロトン親和力等についても検討を行った。量子化学計算は、Gaussian 16 を用い、wb97xd/6-311+G(d,p)//IEF-PCM により水の分極体モデル中で計算を行った。

回帰計算は Scikit-learn のライブラリを用い、ランダムフォレスト回帰により行った。予測性能の評価を行うために、トレーニングデータとテストデータを 80:20 の割合にランダムで分けて、トレーニングデータで構築したモデルによってテストデータの予測性を検証した。指標には二乗平均平方根誤差 (RMSE) を用いた。

## 結果および考察

アミン 1 種類の系について、予測性能の検証を行った。図 1 にその結果を示す。トレーニングデータはもとより、テストデータも良好に CO<sub>2</sub> 吸収量を再現することが分かった。RDkit 特徴量、HSPiP 特徴量を用いた場合、RMSE=0.078, 0.077 といずれも同程度の予測精度であった。ランダムフォレスト回帰においては、特徴量の重要度を計算することができる。重要度を評価した結果、温度、圧力等のプロセスパラメータに加えて、電荷に関する特徴量が CO<sub>2</sub> 吸収量の予測に重要な役割を果たしていることが明らかとなった。

アミン 2 種類を含む系についても、同様に予測精度の検証を行った。その結果、アミン 1 種類の場合と同様に、RMSE=0.079 と、高精度で CO<sub>2</sub> 吸収量を予測することができた。重要度の高い特徴量についても、アミン 1

種類の場合と同様であることが確認された。

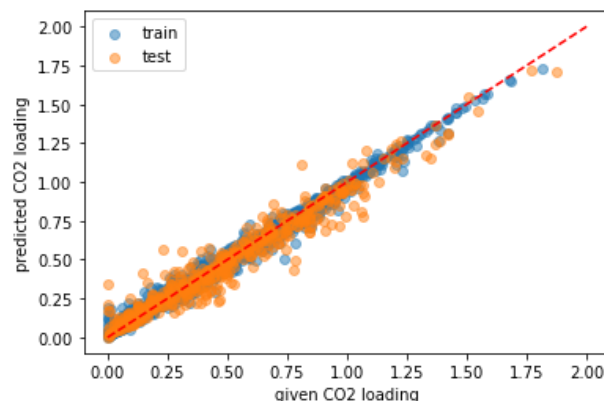


図 1 アミン吸収量のパリティプロット (RDkit 特徴量を用いた場合)

続いて、新規アミンへの対応可能性を検討するために、1 つのアミンをモデルの学習過程で外し、そこで学習したモデルでそのアミンの吸収量を予測する、ということを繰り返す、leave-one-group-out 法により、モデルの予測精度を検証した。その結果、44 のアミンについて、検討しその RMSE の平均値を算出したところ RMSE=0.179 となった。この値は、当該アミンを含んで学習したときの RMSE(0.079) と比べて大きな値となっており、予測精度の低下を示している。アミン種ごとに見ると、特に環状やジアミン等の特徴を有するアミンについて予測精度の低下がみられており、新規特徴量やモデルの改善が予測精度の向上に寄与する可能性がある。本研究では、量子化学計算で得られた N 原子における電荷や、プロトン親和力を特徴量として加え、予測精度の変化を検討したところ、RMSE=0.175 とわずかながら改善傾向も見られたため、有効な特徴量を取り入れることで予測精度をさらに改善することが期待される。

## まとめ、今後の課題

アミンの特徴量およびプロセスパラメータを利用することで、アミンを 1~2 種類含む水溶液系での CO<sub>2</sub> 吸収量を予測可能であることを示した。一方、新規アミン種が含まれると予測精度が低下することが示唆されたため、モデルの汎化性能を向上することが今後の課題である。そのための方策として、モデル自体の改良に加え、新規特徴量を取り入れることがアプローチ法の一つとして考えられる。