



動的機能空間の高時間分解能解析 -高速応答空間材料創製の設計を目指したAI検出器の開発-

堀 彰宏¹, 畠岡 潤一¹, 吉田 学¹
1SyncMOF 株式会社

キーワード：金属有機物構造体, MOF (Metal-organic framework), ガス吸着材, X線回折

1. 測定実施日

2020年11月11日 BL5S2 (1シフト)
2020年12月7日 BL5S2 (2シフト)
2020年12月17日-18日 BL5S2 (3シフト)

2. 概要

菅首相は所信表明演説で、2050年にカーボンニュートラルを実現する目標を打ち出した。日本だけではなく、世界的な「グリーン成長」を可能にするキーマテリアル・キーテクノロジーが希求されている。もはや「脱炭素」と無縁でいられる企業はなくなったと言っても過言ではない。そのような中、CO₂などの温室効果ガスを空気中から分離回収できる、水素などエネルギー資源ガスを大量に貯蔵できる機能を有する新しいガス吸着材である金属有機物構造体 (MOF: Metal-organic framework) が脚光を浴びている。MOFは、従来の吸着材であるゼオライトや活性炭とは異なり、ターゲットガスに対して、MOF骨格を柔軟に変形させながら分子を細孔内に取り込む誘導適応型の柔軟な骨格を持っている¹。すなわち「刺激応答性」と「動的特性」はMOF特有のナノ空間機能であり、これらの機能の最適化こそが、MOFの産業利用を加速させると考えられる。最適なMOFの合成には、吸着メカニズムの解明が必須である。本課題では、SyncMOF株式会社で合成したCO₂分離能を有するMOFが、CO₂を吸着する際に誘起される構造変化を高速に捉えるために測定技術を開拓する。高時間分解を行うため、検出器のノイズ除去をAIにより行った。ピークとバックグラウンドの識別を行い、短い露光時間でもピーク認識に十分なSNが得られるか検討を行った。

3. 背景と研究目的

石炭・石油等の化石燃料から、シェールガスをはじめとするガス資源の利活用を考える地球規模でのエネルギー革命に人類は直面している。世界の天然ガス需要の見通しは2010年から2035年にかけて約50%の増加が見込まれる。天然ガスを燃焼させたときに必ず排出されるCO₂を完全に除去するMOFの開発は急務であり重要である。MOFの社会実装を行う上で、CO₂分離回収過程の可視化は材料開発を行う上で必須の事項である。これを行うためにはシンクロトロン光の光源の改善、革新的な検出器に改善等ハード面の技術革新が重要であるが、大きな予算と時間的なコストが避けられない。そこで本課題では、当社のAI技術を既存の検出器に組み込むことによりスムーズでありながら大きな技術的な革新を生み出す。AIの普及は、自動運転、amazon等の販売促進ツール、画像認識部門といった一般市民の私生活への導入に力が入れられ、AI関連企業はそれぞれの領域でしのぎを削っている。申請者は放射光の最先端施設で行われる研究にこそAIの情報処理能力は使われるべきだと考えているが、AIの導入コストが高いためこのような取り組みはほとんど行われていない。本研究課題では、最先端の研究現場で当社のAI技術を使用していただき、分野融合的にAIを活用することにより研究を加速させたいと考えて

いる。当社 AI 事業の取り組みが研究現場で広く使われ、普及することを望む。そのため研究者との対話による問題点の明確化とゴールを意識した AI 開発を行う。

4. 実験内容

実験では、MOF のガス吸着状態での構造変化を短時間の X 線照射で測定するために、ガス吸着下での X 線回折測定を行った。AI を用いた検出器のノイズ処理については、SyncMOF 株式会社ですでに開発を行い実装しているアルゴリズムを適用することにした。Fig.1 に SyncMOF 株式会社においてラマン測定に適用している AI 技術について示す。検出器本来のノイズを学習させることで、短時間露光にもかかわらず、高い SN のデータが得られていることが分かる。実験では、BL5S2 の既存の回折計に対して、秒スケールの測定を繰り返しデータを取得した。これと、長時間露光のデータを比較し、ノイズの機械学習を行った。実験では、MOF の粉末をガス導入可能な試料ホルダーに詰め、真空ポンプおよびガスラインに接続する。MOF を真空排気しながら 120°C で加熱乾燥し、吸着温度 (195 K) まで冷却した後、1 気圧までガス導入を行った。その際ビームライン BL5S2 の既設で検出器のシャッター限界まで短時間 X 線を露光しデータを取得する。その後 1 気圧ガスを導入した状態で長時間露光を行う。長短時間露光測定した X 線回折データを SyncMOF の AI 技術により時間発展的な処理を行うことで SN を上昇させる。この AI 処理後のデータと長時間露光を行ったデータを比較することで、既設のビームラインの検出器を用いながら高速かつ高分解能なデータ取得ができるように AI 技術の向上を図る。XRPD 測定はビームライン備え付け装置および検出器を用いて行った。試料部の温度調節には、ビームライン備え付けの N₂ 吹付装置を用いる。サンプルセルは、ビームライン備え付けガス導入サンプルホルダーを用いる。サンプルセルは、ガスの導入に用いるステンレス配管を有し、この配管を持ち込みのガスハンドリングシステムに接続することで、試料部のガス圧を調整することができるように設計されている。ハンドリングシステムにはターボ分子ポンプ (HiCube, 実験者持参)、ガスポンペを接続する。接続したターボ分子ポンプの排気口は N₂ 供給配管と分岐接続し、N₂ を流通させて排ガスを希釈した上で施設内の換気口に接続し、外部に排出した。

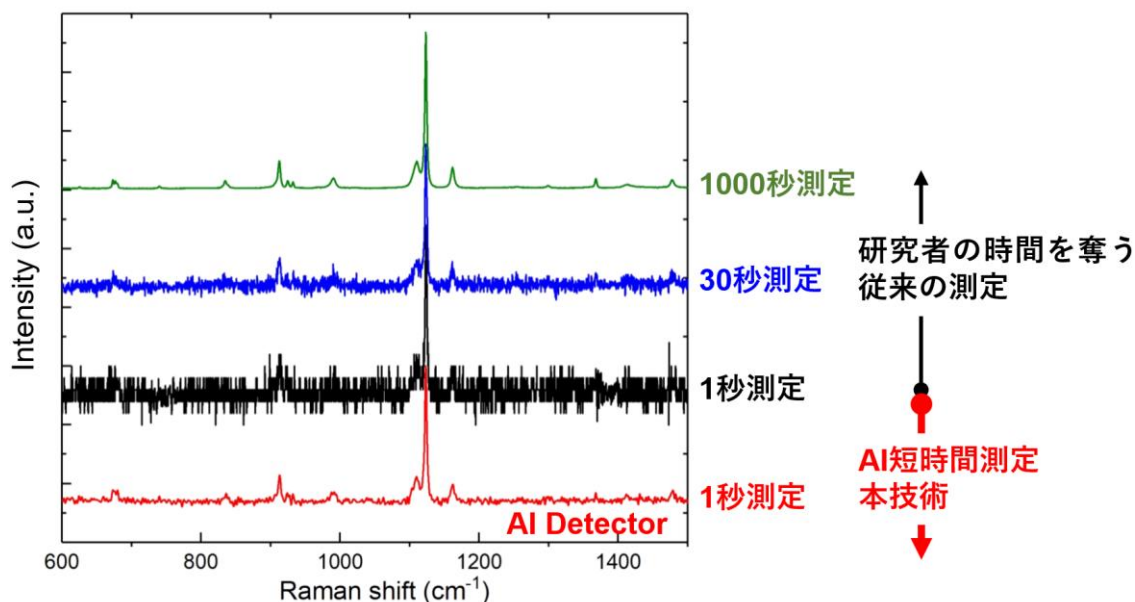


Fig.1 SyncMOF 株式会社で開発した高速時間分解 AI 処理を行ったラマンデータと長時間露光を行ったラマンデータの比較。

Fig.2 に今回測定した X 線回折パターンと AI 処理を行った回折パターンの比較を示す。ガス導入は、degas 状態の MOF にガスを 100 kPa まで行った。測定強度は露光時間で規格化してそれぞれの回折パターンを比較することにした。

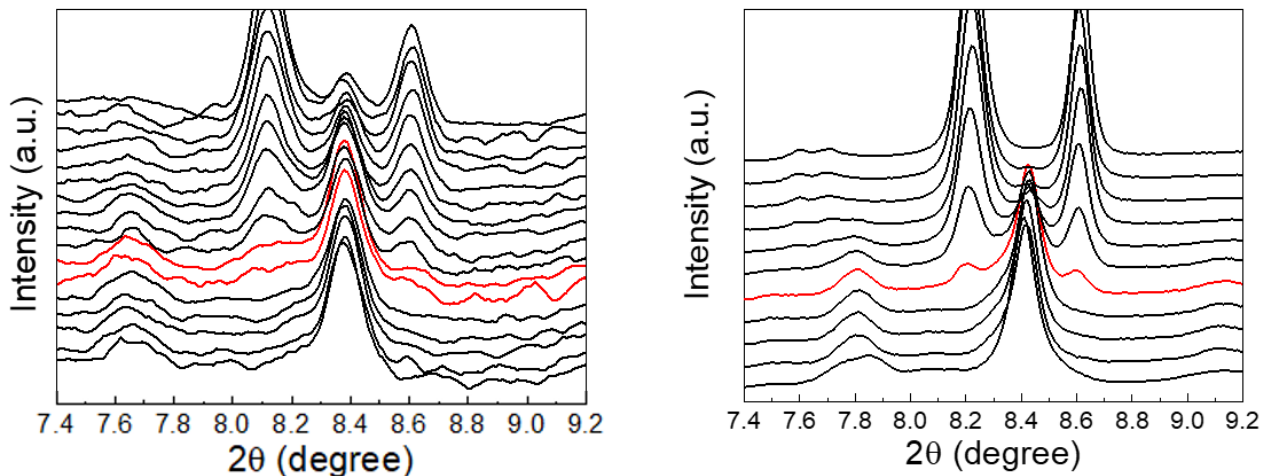


Fig.2 MOF にガス導入過程における X 線回折パターンの変化。(左図) ガス導入時の X 線回折パターン。(右図) AI 処理を行った回折パターン。

AI 処理により、バックグラウンドとピークが明確に区別できるようになっていることが分かる。AI によるこのような処理により、短時間露光でもデータ解析が可能であることが分かった。しかし、一方で、AI における機械学習に必要な学習データが不足しているため、8.4°付近のピークの識別が困難であるという問題が生じた。この問題を解決するためには、検出器毎のデータの蓄積が必要であることが分かった。

5. 結果および考察

現在、上記アルゴリズムと同様の解析処理を行っている。実験では、数秒スケールの時間分解でデータを取りためたが、シンクロトロン光は数秒スケールでは十分強く、SN が十分よかった。一方、MOF のガス拡散現象は、さらに 1/1000 といった時間スケールで起こっているため、数秒スケールでは時分割測定ができていないことが判明した。したがって、さらに高い時間分解を追求するためには、サンプル部よりも上流に回転スリットを挿入するなど、試料に対しての X 線照射時間を短くする必要があると考えている。回転スリットは、既設のビームラインの配置をほとんど変えずに短時間の X 線露光が可能な方法である。このようなハード面の少しの変更と SyncMOF で現在解析処理を行っているソフト面での変更とを並行して行うことで、MOF のガス吸着現象の解明だけではなく、反応等を X 線で追跡したいといった他グループの要望にも応えられると考えている。

本研究課題の主たる目的は、既存の検出器で取得したデータを AI により SN を改善することで、これまでデータ取得時間の極端な短縮化及び短時間で誘起される反応の可視化である。したがって AI を用いた基礎科学的な側面も強い研究課題である。データ取得時間の短縮化が実現すれば、1 回のビームタイムで取得できる実験データの数が格段に増え、研究が加速すると考えられる。特に事業規模が小さい中小企業にとって、シンクロトロンでビームタイムを確保することを難しい。またビームタイムを確保したとしても測定できる解析可能な SN のよいデータを取得するためには長時間露光が必要であるため、サンプル数を減らさざるを得ない。本 AI 検出器が完成すればこのような問題は解決し、多くの中小企業ユーザーに様々な試料に測定に挑戦していただけるだけでなく、新しい中小企業ユーザーの確保にも貢献できる。一方で、本研究課題で取り扱う材料である MOF は、新たな吸着材として様々な企業から注目を集めている。本研究課題が達成できれば、MOF の研究開発がさらに加速し、温室効果ガスの除去材料として実用化されることになると考えられる。本研究課題申請では、無尽蔵に存在する空気から CO₂ を分離回収する MOF の気体分離メカニズム解明に取り組む上で AI 検出器を開発するが、それに

より資源小国といわれる日本において、あいちシンクロトロン光センターの協力を得て新たな材料開発、MOF を利用した資源獲得を実現したいと考えている。

6. 今後の課題

AI によるノイズ学習には、1000 個程度の短時間露光の X 線回折データが必要である。したがって、アルゴリズム構築のためにもう少し長いビームタイムが必要と考えている。また、上述した通り、数秒スケールの露光時間は、ガス吸着現象やその他の反応を追跡するには長すぎると考えている。したがって、試料部よりの上流に回転スリットを挿入するなどハード面の少しの変更が必要と考えている。

7. 参考文献

1. Science, 2014, 343, 167