OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Studies on the Design of CO_2 Electrolysis Systems Based on a Machine Learning Approach
Author(s)	Setyowati, Vuri Ayu
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/101495
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

Form 3

Abstract of Thesis

Name （Vuri Ayu Setyowati）	
Title	Studies on the Design of CO_2 Electrolysis Systems Based on a Machine Learning Approach （機械学習アプローチに基づく CO_2電解システムの設計に関する研究）

Abstract of Thesis

Amid growing concerns about global environmental issues, there is increasing interest in technologies that utilize CO_2 as a carbon source and convert it into valuable chemicals. Among the various methods for CO_2 utilization, electrochemical CO_2 reduction (CO_2 electrolysis) stands out due to its potential to achieve high conversion rates even under ambient conditions. For the social implementation of this technology, it is essential to produce the desired products in specific composition. However, CO_2 electrolysis systems involve a complex hierarchical structure, including the electrocatalyst, the supporting electrode, and the electrolytic reactor housing the electrode. The factors determining product compositions are numerous and interact in complex ways. Exploring the correlation between experimental conditions and the desired product across a vast parameter space is required, therefore making it impractical to identify optimal conditions through conventional experimental approaches. To address these challenges, this study aims to develop a method for rapidly exploring CO_2 electrolysis systems with desired characteristics, utilizing a machine learning (ML) based approach.

Chapter I comprehensively described the background and current research emphasis of CO_2 electrolysis, including developments of novel electrocatalysts, the application of gas diffusion electrode, and designing of the electrochemical reactors. Specifically, prior studies that utilized ML for the design of CO_2 electrolysis with the desired characteristics are described, followed by a discussion of the unresolved challenges that still need to be addressed.

Chapter II investigated the impact of the electrode fabrication and electrolysis conditions on the product selectivity of CO_2 electrolysis with Ag electrocatalysts using ML-based approach. Specifically, the experimental conditions for obtaining the highest FE_{CO} and desired H_2/CO (ξ) mixture ratio were explored. Notably, unlike previous ML-based studies, experimental results were used as training data. This ML-based approach allowed us to quantitatively assess the effect of experimental parameters on these targets with a reduced number of experimental trials (only 56 experiments). An inverse analysis based on the ML model suggested the optimal experimental conditions for achieving the desired characteristics of the electrolysis system, with the proposed conditions experimentally validated. This study constitutes the first demonstration of optimal experimental conditions for electrochemical CO_2 reduction with desired characteristics using the experimental results as training data.

Chapter III identified the key factors affecting the prediction accuracy for the faradaic efficiency of CO generation (FE_{CO}). A comprehensive investigation was conducted by evaluating the ability of model prediction, analyzing various conditions, and explaining feature interaction that were confirmed by various statistical analytical methods, including Shapley additive explanations (SHAP), principal component analysis (PCA), Pearson correlation analysis, and K-means clustering. For this ML analysis, various features (Ag catalyst type, Ag catalyst loading, Ag:Nafion ratio, solvent type, CO_2 ratio in the supply gas, and cathodic current density) were statistically processed. The analysis demonstrated that, rather than individual features, there are complex interactions between features that have a significant impact on ML prediction accuracy. The results highlighted that designing and regulating feature interactions is crucial for constructing CO_2 electrolysis systems that exhibit the desired characteristics.

In overall, this work presented the strategies to design CO_2 electrolysis systems by ML-based approaches and identified the main factor contributing high prediction accuracy. The findings of this work provide the future perspective for the development of carbon cycle technologies using CO_2 electrolysis.

様式７

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（Vuri Ayu Setyowati）		
	（職）	氏　名
論文審査担当者	主査　教授	中西　周次
	副査　教授	久木　一朗
	副査　教授	西山　憲和
	副査　招聘教授	向田　志保 （附属太陽エネルギー化学研究センター）

論文審査の結果の要旨

地球規模の環境問題への懸念が高まる中、CO_2を有価物質のための炭素源として捉える変換技術への関心が高まっている。種々の還元的なCO_2資源化方法の中でも、電気化学的なCO_2還元（CO_2電解）は、常温条件下で進行しエネルギー変換率が高い点で注目されている。この技術を社会実装に資するレベルまで引き上げるためには、目的とする特定組成の生成物を得るための方法論を確立する必要がある。しかし、CO_2電解システムは、電極触媒、その触媒を担持する電極、その電極を搭載する電解リアクタなどから構成される複雑な階層構造を有する。このことに起因して、生成物組成を決定する要因が多数存在し、かつこれらが複雑に相互作用する。したがって、広範なパラメータ空間における実験条件と所望の生成物との相関を理解する必要があり、従来の実験アプローチでは最適条件を特定することが現実的には極めて困難となる。この課題に対応するため、本研究では、機械学習（ML）アプローチを活用して、所望の特性を持つCO_2電解システムを迅速に探索する方法の開発に挑戦している。

第1章では、CO_2電解の研究背景と最近の研究動向に関し、電極触媒の開発、高電流化のためのガス拡散電極の開発や、安定性向上のための電解リアクタの設計などについての包括的な説明がなされている。特に、MLを利用して所望の特性を持つCO_2電解を設計した先行研究を取り上げ、未解決の課題について議論している。

第2章では、Ag電極触媒を用いたCO_2電解の生成物選択性に関する電極製造条件ならびに電解条件の影響がMLアプローチによって調べられている。特に、COファラデー効率（FE_{CO}）を最大化するための実験条件、ならびに所望のH_2/CO混合比（ξ）を得るための実験条件を探索することを対象として定めている。注目すべき点として、これまでのMLを利用した先行研究とは一線を画し、実験結果を教師データとして使用したことが挙げられる。このMLアプローチにより、少ない実験試行回数（56回）を元に、種々の実験パラメータが目標対象に与える影響を定量的に評価した。さらに確立したMLモデルの逆解析を通して、所望の特性を達成するための最適な実験条件が提案され、その条件が実験的に検証されている。このように、本研究は、実験結果を教師データとして使用して所望の特性を持つ電気化学的CO_2還元の最適な実験条件を示した初めての事例となった。

第3章では、FE_{CO}の予測精度に影響を与える主要因の特定が試みられている。具体的には、モデル予測能力を評価し、さまざまな条件を分析することで、特徴間の相互作用を説明する包括的な調査がなされている。この分析には、Shapley加法説明（SHAP）、主成分分析（PCA）、ピアソン相関分析、およびK-meansクラスタリングを含む統計解析手法が使用された。Ag触媒の種類、Ag触媒の負荷量、Ag:Nafion比、溶媒の種類、供給ガス中のCO_2比率、およびカソード電流密度などの特徴を統計的に処理し、個々の要素の特性ではなく、要素間の複雑な相互作用がML予測精度に大きな影響を与えることを明らかにした。この結果は、従来のようにある要素の制御を試みるだけでは不十分で、要素間の相互作用を設計することが、所望の特性を示すCO_2電解システムを構築する上で重要であることを示した点で意義が高い。

以上のように、本研究では、MLアプローチを活用したCO_2電解システムの設計戦略を提示し、高い予測精度に寄与する主要因が特定されている。これは、CO_2を炭素源とした有価物質生産に新しい方法を提案し、かつその実用化に繋がる重要な基礎的知見であり、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。