

戦略的創造研究推進事業  
—CREST(チーム型研究)—

研究領域

「多様な天然炭素資源の活用に資する  
革新的触媒と創出技術」

研究領域事後評価用資料

研究総括: 上田 渉

2023 年 1 月



## 目 次

1. 研究領域の概要	1
(1) 戦略目標	1
(2) 研究領域	1
(3) 研究総括	1
(4) 採択研究課題・研究費	2
2. 研究総括のねらい	4
3. 研究課題の選考について	6
(1) 研究課題の選考方針	6
(2) 研究課題の選考結果	7
①2015 年度選考結果	7
②2016 年度選考結果	8
③2017 年度選考結果	8
(3) 選考結果のまとめ	9
4. 領域アドバイザーについて	11
5. 研究領域のマネジメントについて	13
(1) 研究課題の進捗状況の把握と評価、それに基づく研究課題の指導	13
(2) チーム型のネットワーク研究所として研究課題間や他の研究領域、国内外の他の研究機関、異分野との連携・協力の推進	14
(3) 報告会、会議等	16
①研究総括サイトビジットと各チームの研究進捗報告会	16
②領域会議	17
③課題中間評価前の領域アドバイザー参加形式チーム会議	17
④合同チーム会議	17
⑤全体チーム会議	17
⑥対外向け PR、シンポジウム等	18
(4) 研究費配分上の工夫	19
(5) 研究領域中間評価結果への対応	20
(6) その他マネジメントに関する特記事項(人材育成等)	21
6. 研究領域としての戦略目標の達成状況について	24
(1) 研究成果の科学的・技術的な観点からの貢献	24
①課題ごとの貢献	25
②各チームの研究成果の国際的水準及び領域全体としての国際的水準	33
(2) 研究成果の社会的・経済的な観点からの貢献	34
①特許出願実績と状況	35

②産業や社会への展開・実装の状況.....	35
③課題ごとの貢献.....	37
(3)その他特記事項.....	44
①国内外の主な顕彰・受賞等.....	44
②報道、プレスリリース.....	46
7. 総合所見.....	50
(1)研究領域のマネジメント.....	50
(2)研究領域としての戦略目標の達成状況.....	50
(3)本研究領域を設定したことの意義と妥当性(研究開始以前や中間評価時点と、終了時点の比較を念頭において).....	51
(4)科学技術イノベーション創出に向けた、今後への期待、展望、課題.....	51
(5)所感、その他.....	52

## 1. 研究領域の概要

### (1) 戦略目標

「多様な天然炭素資源を活用する革新的触媒の創製」

### (2) 研究領域

「多様な天然炭素資源の活用に資する革新的触媒と創出技術」(2015年度発足)

### (3) 研究総括

上田 渉 (神奈川大学工学部物質生命化学科 教授)

上記詳細は、以下 URL をご参照ください。

JST 公開資料「新規研究領域の事前評価」

<https://www.jst.go.jp/kisoken/evaluation/before/index.html>

平成 27 年度新規研究領域の事前評価

[https://www.jst.go.jp/kisoken/evaluation/before/hyouka\\_h27.pdf](https://www.jst.go.jp/kisoken/evaluation/before/hyouka_h27.pdf)

## (4) 採択研究課題・研究費

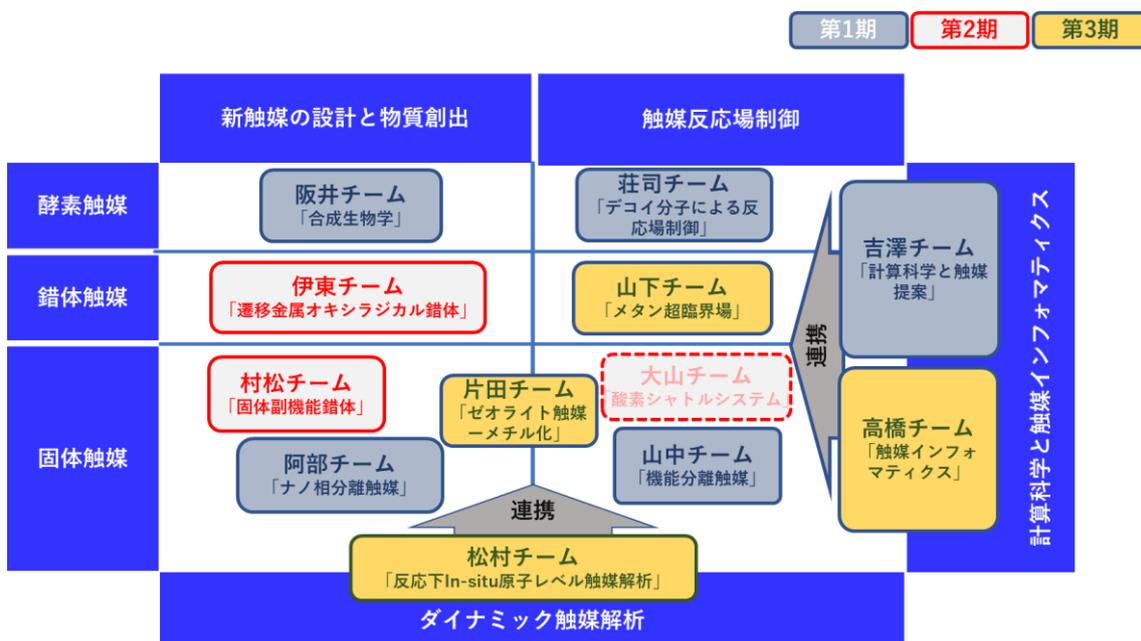
(百万円)

採択年度	研究代表者	所属・役職 採択時 <sup>2</sup> (現)	研究課題	研究費 <sup>1</sup>
2015 年度	阿部英樹	物質・材料研究機構・ 主席研究員(独立研究 者)	高効率メタン転換へのナノ相分離触媒 の創成	271
	阪井康能	京都大学・教授	合成生物学によるメタン酸化触媒の創 製	292
	荘司長三	名古屋大学・准教授 (同大学・教授)	生体触媒の誤作動状態を利用するメタ ンの直接的メタノール変換	316
	山中一郎	東京工業大学・教授	反応場分離を利用したメタン資源化触 媒の創成	284
	吉澤一成	九州大学・教授	計算化学が先導するメタン酸化触媒の 開発と触媒設計技術の創成	180
2016 年度	伊東忍	大阪大学・教授	後周期遷移金属オキシラジカル錯体に よるメタンの酸化反応	327
	大山茂生*	東京大学・教授	酸素原子シャトルによるメタン選択酸 化反応プロセス開発	178
	村松淳司	東北大学・教授	メタンから低級オレフィンへの直接転 換を可能にする金属超微粒子を担持し た複合酸化物触媒材料の創製	390
2017 年度	片田直伸	鳥取大学・教授	メタンによる直接メチル化触媒技術の 創出	285
	高橋啓介	物質・材料研究機構・ 研究員(北海道大学・ 准教授・教授)	実験・計算・データ科学の統合によるメ タン変換触媒の探索・発見と反応機構の 解明・制御	352
	松村晶	九州大学・教授 (久留米工業高等専 門学校・校長)	原子分解能その場観察解析に基づく触 媒機能の原理解明と革新的触媒創製	327
	山下誠	名古屋大学・教授	超臨界メタンを基質兼媒質とした均一 系・不均一系触媒プロセスの開発	256
			総研究費	3,457

(\*大山チームは2019年で中止とし、内4グループを村松チームに2020年度より編入した。大山グループの残額は村松チームに再配分した。)

(高橋チームへは研究の進捗に応じて随時研究資金注入を実施し、研究のさらなる進展を図った。)

CREST 研究領域革新的触媒のポートフォリオ



全体のチーム構成では、酵素触媒、錯体触媒、そして固体触媒のバランス配置とした。また、松村チームをコアに触媒のダイナミクス解析の連携が各チームに縦串に広がり、同様に吉澤チームと高橋チームの計算とデータ科学の方法論は横串に連携できる体制となっている。大山チーム体制は 2019 年度で中止し、構成グループは村松チームへ編入となった。

## 2. 研究総括のねらい

本研究領域の戦略目標にある「多様な天然炭素資源」は、メタンを代表とするアルカンガス資源とした。その理由は、近い将来、様々な炭素資源をバランスよく活用する新しい資源利用体制が不可欠と予想され、その中心的な位置づけにしているのがメタンなどのアルカンガス資源であると考えられるからである。中心的となり得る理由は、H/C比の高いメタン資源の持つ本質的なものに起因するが、日本というローカルに考えても、もしアルカンガス資源が石油とおなじように高度利用できる効率的な技術ができれば、現在の日本の偏重した炭素資源依存からの脱却も可能になり、また新しい炭素資源バランス構造に戦略的に対応できるようになること、新しいメタンをベースにした化学産業を可能にし、二酸化炭素排出インパクトに対して従来と異なるレベルで化学品生産が進められること、さらに日本は、近海にメタンハイドレートが豊富に存在している立地にあるので、将来において他国への炭素資源依存の低減が図れること、などがある。

この実現に向けて必要なメタン化学のターゲット反応は主にメタン酸化的メタノール直接合成と低温酸化カップリング反応によるエタン、エチレン直接合成を設定した。メタンからメタノール合成は従来技術(例えばメタンの水蒸気改質)でも可能であるが、このような大量のエネルギー消費型のプロセスで多段プロセスは、平衡制限なくエネルギー併産型(すなわち低温反応で)のメタン酸化的メタノール直接合成が成立すれば、容易に取って代わることになる。メタンからエタン、エチレン直接合成においても従来の高温反応ではなく、全く新しい機序で進行する反応を成立させることで、これまで限界とされて来た収率 30%以上を図る方向が重要となる。すなわち、旧来技術から完全脱却すること、そしてアルカンガス資源を最大効率で利用した環境負荷の低いプロセスを達成することにある。旧来のC1化学の展開で対応するだけでは新しい時代に備えたことにはならない。

この目標達成には触媒化学と技術の飛躍的な発展が不可欠であるが、メタン化学のための触媒達成が容易でないことはこれまでの研究変遷から明らかである。今求められるのは極めて高度で、革新的な触媒である。従来の石油化学の触媒技術展開にとらわれない、触媒の化学と技術の集積が必要である。メタン化学の特殊性を深く鑑みつつ、現代の触媒化学技術と新しい科学基盤の進展を協調させた、以下のような研究方向の取り組みを設定した。これらは、逆に考えると、メタン化学達成の目標が駆動力となって、新しい触媒化学と技術創出に挑戦するねらいになっている。

メタンの反応では、微生物や酵素を用いた研究例からも分かるとおり、触媒活性の点としての領域を越え、分子を特異的に活性化する広がりのある反応場として捉え、その空間構築、さらには望むものだけを生成させる反応場導入が重要である。このことは、人工触媒でも特異的活性点形成はもちろんのこと、その周りの反応場構築を成立させることも必要になることを意味しており、かなり高次の構造と機能を持った触媒物質の登場をもたらす必要がある。つまり従来にない挑戦的な取り組みが必要である。同時に反応プロセス工学の視点もその中に盛り込んだ触媒物質形成も重要な取り組みとなろう。これには、ナノ集積や特

殊空間構造などから生まれる新しい物質状態を構築する方法論が、新しい機能を持った固体や分子性の触媒の開発に繋がる可能性をもち、高度に制御された物質形成がメタン化学の革新的触媒の登場をもたらすと期待される。また一方で、構造的には単純であっても新物質が生み出す従来にはない触媒機能に着目する取り組みも重要となる。その理由は、物質世界にはまだまだ触媒として未検討の物質が多く存在しているからである。これには、近年進化しているデータ科学、計算科学、計測技術などと緊密連携することによって、これまでに蓄積された触媒に関する経験知を不連続的に飛躍させる新時代の触媒開発、新触媒創出技術を登場させるねらいがある。

以上のような考えのもと、採択研究チームでそれぞれの方向で研究を実施してもらおうが、高度な研究の実施が欠かせないことから、チーム単独で実施する研究に加え、チーム間の連携を積極的に行なうことを推進する。特にデータ科学、計算科学、計測技術の研究を中心にした連携体制で研究の高度化を図ることができる組織体制を構築し、従来に無い研究遂行をねらう。

最後に、当領域の募集にあたっては、募集説明会等で以下メッセージを伝えていることを追記する。

「この CREST 研究領域からメタン社会が始まった、と言えるようにしたい。」

「この CREST 研究領域から新しい型の触媒研究が始まった、と言えるようにしたい。」

### 3. 研究課題の選考について

#### (1) 研究課題の選考方針

本研究領域では、上述のねらいをもとに、以下の四つの取り組みの方向性を例示し、従来にはない触媒機能領域に到達する斬新な研究構想を展開した申請を募った。いずれにおいても、メタンを主役に、その特性を十分に織り込んだ上でポテンシャルの高い触媒設計概念を提示し、実施することを不可欠とした。ただし、概念の革新性を実証する上で初期的にエタンやプロパンなどのアルカンガス資源をターゲットにすることは有意義とするが、メタン反応の展望が見えることを必要条件とした。

##### 例 1. 新しい物質状態の構築による革新的触媒の創出

すでに触媒として存在している物質(元素種やその構成、ゼオライトや錯体などの構造体)に新しい物質状態(不安定な価数、原子の立体配置、複雑構造体、多元的な組織体など)を導入し、メタンをはじめとするアルカンガスの触媒反応を達成する研究。これには、新しい物質合成法や触媒機能付与の方法論の展開も含む。革新的触媒の創出にとって最も重要な取り組みの一つであるため、研究者のオリジナルな触媒設計概念のもと、触媒機能創出にむけて粘り強く挑戦する提案であること。

##### 例 2. 優れた機能を持つ分子集合触媒の創製

錯体やクラスターなどの分子集合触媒の創製にあたり、膨大なアルカンガス資源を利用する化学プロセスを成立させるためには、生体酵素の機能を学びつつもこれを凌駕する人工触媒の成立が必要になる。そのためには、従来検討されてきた分子活性化機能を刷新することに加えて、反応を促進する場の構築等、「多点相互作用領域」を形成する新しい分子集合触媒創製を強く指向した提案であること。

##### 例 3. 触媒反応の「ダイナミズム」の理解と、それに基づく触媒の革新

触媒物質は、反応物や生成物が関与して動的に変化する、すなわちダイナミズムを必ず持つもので、触媒以外の物質研究では普通なじみがない現象が伴う。特に触媒酸化反応はこの現象の影響を強く受ける一例である。このダイナミズムの制御が触媒を生み出す上で最も難関であり、新しい物質を触媒として検討してもすぐに結果につながらない理由の一つでもある。この重要な点を強く意識して触媒物質を選択した研究を進める必要があるが、意識だけではこの難しい命題を達成することはできない。必要なのはダイナミズムを担保する物質構造を明快にする学術展開であり、それはダイナミズムの計算科学であり、ダイナミズムのその場観察、計測であり、そして触媒物質構造-ダイナミズム相関の確立である。さらに進んで、メタン触媒化学を明確にターゲットにした上述のような計算科学や計測技術の取り組みが必要になる。このような方向の研

究提案であること。同時に、ここでの成果情報を他の研究、例えば新しい物質状態構築の研究にフィードバックすることで他のグループとの連携を進め、それぞれの触媒の具体化や革新化を推進する。

#### 例 4. 未検討物質をベースとした新規触媒物質探索

従来の触媒形態を踏襲しながら広い範囲で絨毯爆撃的に物質探索するこれまでの方式から脱却し、革新的な触媒の創出技術の発展を目指す。具体的にはこれまでに多くの研究分野で蓄積されてきたすべての物質、材料の中から、既に触媒として研究されてきた系を除外し、残った未検討の物質、材料の中から新規触媒物質を探索する。

この膨大な物質群の中から触媒目的にあった新規触媒物質の探索を効率的に行うためには、旧来の触媒化学における研究方法にとらわれない、画期的な研究手法の確立が必須であると考えられる。例えば、近年進化している計測技術やマテリアルズインフォマティクスなどが革新的な触媒の創出を先導する研究提案を推奨する。

以上のような元素レベル、空間レベルの局所的環境を精緻に制御できる触媒構築方法論の展開には、多様な分野の物質研究の知見の活用が有効と考える。従って、触媒分野以外の研究者の積極的な参画あるいは中心的な実施も望ましい。

## (2) 研究課題の選考結果

### ①2015 年度選考結果

本研究領域は、多様な天然炭素資源をバランスよく活用できる将来の産業基盤の確立を目標に、その根幹をなすメタンをはじめとするアルカンガス資源を従来にない形で有用な化成品・エネルギーに変換するための革新的な触媒の創出を目的に、2015 年度に発足した。最近のシェールガスの大規模開発や将来のメタンハイドレート利用の動向などを背景に、更なる新しいメタン利用を可能にする革新的な触媒技術の進展が望まれる中で発足した研究領域であり、強い機運が後押しする中ではあったが、当然の事ながらメタン利用触媒技術開発は難度が高い事も衆目の一致するところで、本研究領域では従来にない形、すなわちメタン利用触媒技術開発への研究提案者の強い熱意と情熱を基盤に、エビデンスが少ない下でも飛躍的発想と挑戦的創造を提案する研究を広く募集した。研究提案者にハイリスク・ハイリターンを強く意識する事を求めた形となり、また募集開始から締め切りまでの時間が限られた中、ハードルの高い状況ではあったが、25 件の研究課題応募があった。

応募された内容の多くは、本研究領域が推進する取り組みの方向性として募集要項の領域説明の中で例示した内容を的確に反映しており、酵素系、酵素モデル系、錯体系、ゼオライトや金属などの固体触媒、加えて電極反応、光反応などの利用、そしてこれらの複合系、さらには計算科学とインフォマティクスの展開を念頭に置いたものなど、最新の触媒

研究の動向を色濃く反映しつつも、先進的な内容に富むものであった。これらの応募課題の選考を厳正かつ公正に進め、12件の面接選考を経て、最終的に5件の研究提案を採択した。採択課題は、

1. 合成生物学のアプローチ
2. 酵素系への人工的機能付与と展開
3. 酵素や固体触媒の局所的反応場の計算科学的理解と新反応場の創出
4. ナノレベルでの異相物質接合場の固体触媒
5. 炭素移動場を介する分離機能触媒開発

に関するもので、いずれもメタンの反応触媒化学の礎を築くものであり、飛躍的発想と挑戦的創造を果敢に提案したものであった。いずれの採択課題もメタン反応の特殊性を十分に認識し、これまでの独自研究成果を飛躍させた触媒機能発現の方法論を提案しており、成果が大いに期待された。

## ②2016年度選考結果

2015年度に本研究領域がスタートしてから様々な分野の研究者が本研究領域に興味を持ち、様々な挑戦的研究が誘起されつつあると認識される。当然の事ながらメタン利用触媒技術開発は難度が高い事も衆目の一致するところで、メタン利用革新的触媒創出を導く戦略的挑戦的研究を立案することは依然容易ではないが、そのような中、2016年度は18件の応募から3件を採択した。メタン利用触媒技術開発への研究提案者の強い熱意と情熱を基盤に、エビデンスが少ない下でも飛躍的発想と挑戦的創造をベースにした研究を採択した。採択課題は、

1. 生物無機化学の分野からメタン酸化酵素を人工的な錯体触媒で成立される取組。錯体の活性中心のみならず、酵素類似の反応場をも構築する研究
2. 酵素分子を効果的に利用できるシャトル機能の構築と物質分離機能を有した固体触媒
3. 固体触媒本体にメタン反応に特化した複数の元素間、相間協働を成立させた固体触媒構築

の研究であった。これらの研究はメタン反応の基本要素機能を開発するものであり、これまでに採択した課題を縦横に結びつける役割が一部できると期待した。本研究領域の全研究チームが連携してメタン反応のための触媒化学の学術と技術に革新をもたらす体制ができた。

## ③2017年度選考結果

本研究領域は、多様な天然炭素資源をバランスよく活用できる将来の産業基盤の確立を目標に、その根幹をなすメタンをはじめとするアルカンガス資源を従来にない形で有用な化成品・エネルギーに変換するための革新的触媒の創出を目的にし、この目的のもと、2千

ームによる酵素系触媒研究、1チームによる錯体系触媒研究、そして4チームによる固体系触媒研究、1チームによる計算化学の視点から本研究領域とさきがけ研究領域にまたがり、各研究チームを支援する研究がすでに進行していた。革新的な触媒創出をめざした研究が活発にできる組織展開を期した体制を敷いた。この年度にあたっては、本研究領域課題であるメタン利用触媒研究の拡充をさらに図りつつも、触媒機能あるいは触媒物質自体の創出方法論の開発を指向した研究、特異なメタン反応場を与える新規な反応システム研究、またマテリアルズインフォマティクスを展開するなどして触媒インフォマティクスを構築し、新規触媒物質を創出する研究、さらに環境TEMや放射光などを用いたその場観察計測をベースにして、実触媒に近い環境下での触媒機能のダイナミズムを理解、高度解析・予測することを主題にした革新的触媒を連携研究的に創出する研究などを推進する方針のもと、研究提案を募集した。

このような中、この年度は28件の応募があり、4件の研究提案を採択した。採択研究課題は

1. ゼオライト物質に革新をもたらす物質合成研究とメタン活性化研究
2. ハイスループット式触媒反応のビッグデータ収集からなる触媒インフォマティクス構築により新規メタン選択酸化触媒創出
3. メタン超臨界というメタンが反応基質でもあり溶媒でもある特殊場を利用した反応システムの応用基盤構築
4. 実触媒反応環境下での固体触媒の作用現場をみるオペランド分析システム構築

の研究であった。ここで採択した研究においても、これまで採択した研究課題の骨格となる物質研究、超臨界、触媒インフォマティクス、そしてオペランド解析の研究は他の研究チームに強く影響するものであり、また相乗効果が期待できる内容であった。

### (3) 選考結果のまとめ

難度の高い研究ターゲット設定であったため、事前のメタン反応に対するエビデンスが無い中、強い信念で5年間挑戦し続ける価値の高い研究提案を選考するようにつとめた。3年間の募集を通して、触媒革新への着実な道筋として必要な物質科学、生体化学、反応化学、物質情報科学、高度計算分析化学の参画が成立し、メタン反応のための触媒化学の学術と技術に革新をもたらす本格的な研究・連携体制ができたと考えている。特に計算科学、計測、インフォマティクスのグループには、領域内を横断し、従来にない新しい研究アプローチを生み出すよう、面接選考時でも十分に質疑し、採択した。

採択者には面接後の面談時等に、本研究領域の運営方針として打ち立てた、メタン利用革新的触媒創出を導く戦略的かつ挑戦的な研究を推進するための以下の重要基本方針を提示し、研究総括としての意向を伝えた。

- メタンの反応の達成という基軸は常に堅持すること。

- 触媒の革新性を明確にする学術研究を実施すること。
- 最終目的の結果に達したかどうかよりも、計画をとことんやりきること。ここまでやった、との実施度で評価する。
- 研究の進展の中で新しく良い方向性を取り入れることは推奨する。ダイナミックな研究実施が肝要である。
- メタン反応を起こさせるために過酷反応条件を設定するなど、本領域がめざす革新的触媒創出の方向から離れた研究は推奨しない。過渡的に進めることはよしとするが、その方向での成果で留めず、さらなる発展研究でブレイクすること。
- チーム内、領域内外の計算科学、計測、インフォマティクス等、様々な連携を通して従来に無い科学情報を構築し、これを触媒選択の判断材料や触媒構築原理として触媒開発を進めるような新しい形の研究を模索、実施すること。
- メタン反応技術としての完成系をイメージし、そのための要素触媒技術、プロセス技術を整理すること。またその達成に向けた必要研究の進捗を把握すること。
- 高難度の研究にありながらも、学術的成果が出る研究計画を適宜盛り込み、実施すること。
- 触媒反応成績に対して具体的な数値目標を設定することは必ずしも要求しないが、革新的な触媒化学の芽がはっきりする程度の反応成績は要求される。
- チーム間移動研究などを通し、ポスドクなど若手研究者の高度育成を図ること。
- 上記基本方針の実施度を定期的にチーム内で確認し、研究総括に報告する。
- へこたれず、強い信念で最後まで研究をやり抜くこと。

#### 4. 領域アドバイザーについて

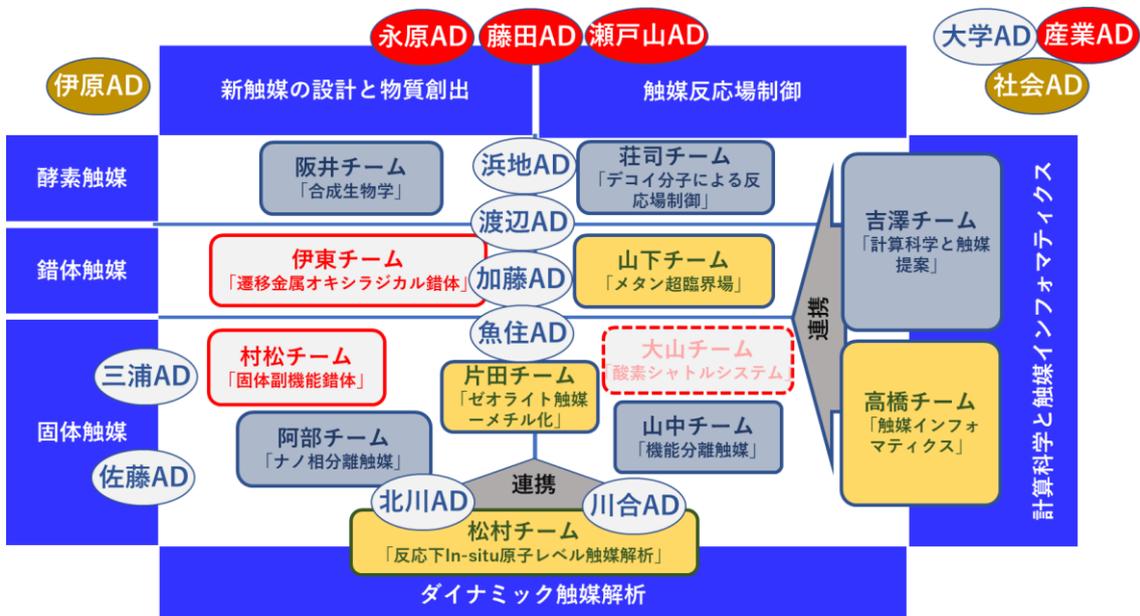
領域アドバイザー名	所属(現所属)	役職	任期
伊原 賢	エネルギー・金属鉱物資源機構	担当調査役	2015年4月～ 2023年3月
魚住 泰広	自然科学研究機構 分子科学研究所	教授	
加藤 昌子	関西学院大学 生命環境学部	教授	
川合 眞紀	自然科学研究機構	機構長	
北川 宏	京都大学 大学院理学研究科	教授	
小林 久芳	京都工芸繊維大学	名誉教授	
佐藤 智司	千葉大学 大学院工学研究院	教授・副学長	
瀬戸山 亨	三菱ケミカル(株) エグゼクティブフェロー／サイエンス&イノベーションセンター瀬戸山研究所	所長	
永原 肇	滋賀医科大学	客員教授	
浜地 格	京都大学 大学院工学研究科	教授	2018年4月～ 2023年3月
藤田 照典	三井化学(株)／中部大学	シニア・アドバイザー／特任教授	2015年4月～ 2023年3月
三浦 弘	埼玉大学	名誉教授	
渡辺 芳人	自然科学研究機構 分子科学研究所	所長	
阿波賀 邦夫	名古屋大学	教授	2015年4月～ 2017年3月

**\* 人選にあたっての考え方**

触媒化学に精通し、固体触媒、錯体触媒、酵素触媒、物質化学、計算科学、工業触媒技術、そしてメタン動向の専門家からなる領域アドバイザーを設定した。特に、本研究領域は産業利用の側面からのアドバイスが重要になることから多くの企業研究経験と高い見識を持った3名の異なる化学企業からの参画を願った。本研究領域にとって最強となる企業からのアドバイザーであり、各研究チームの出口を見据えた本格的なアドバイスを提示し、またプロジェクトの橋渡しや関連企業紹介など、産業界からの視点での貢献を依頼した。また採択研究課題のチーム間の連携を的確にアドバイスできるよう、触媒化学のみならず多方面で知識が豊富で、実際活躍している方々にお願いした。

下図は、各研究チームの構図の中に、各領域アドバイザーの主たる対象をアドバイザーの専門性を反映させて配置したものである。伊原アドバイザーはメタン資源の動向の専門家であり、広く社会的視点から本研究領域の活動をチェックしていただいている。企業からの3名のアドバイザーは企業経験のみならず、錯体触媒や固体触媒、反応工学、物質化学の分野でも専門性が高く、領域全体のあるべき方向性を的確にアドバイスするようお願いした。

本研究領域発足段階では触媒を専門としない固体材料の分野からの構造と機能やマテリアルズインフォマティクス分野からの研究チームの参画を期待していたが、採択に至らず、この方面でのアドバイスを予定していた阿波賀アドバイザーは第3期の選考までの参画とした。一方、浜地アドバイザーには本研究領域の中核をなす生体、錯体触媒の研究のさらなる推進を図るため、途中からの参画となった。



## 5. 研究領域のマネジメントについて

### (1) 研究課題の進捗状況の把握と評価、それに基づく研究課題の指導

研究総括はバーチャル・ネットワーク型研究所の所長である、との位置づけを活用し、前述の基本方針のもと、各研究課題の動向をリアルタイムに近い形で把握しながら（下記「報告会、会議等」を参照）、コメントや要望を意見交換した上で、研究内容の検討、組織の編成の改変や組織の充実、研究環境の充実、装置の導入などをトップダウン的に決めるように努めた。また、本研究領域の特徴であるチーム間連携を活発化させるために様々な連携チームを編成し、連携の実効性を上げた。

前者について具体的には、スタート時が肝心と考え、研究チームの発足から速やかに研究代表者のみならず主たる共同研究者を含めたサイトビジットを実施し、複数名の領域アドバイザーも同席し、その都度現場において研究の実施状況、研究の具体内容の報告を受け、また要望を受けて、必要な対応を速やかに実施するようにした。そのためサイトビジットの数はかなり多い。

各チームの組織について積極的に関与した。発足時に研究者の追加を設定したり（例えば、比較対象元素拡充のため伊東チームへの小寺教授の当初からの参画）、途中から補充する対策を実施したり（例えば、大山チームの研究運営のテコ入れのため宍戸教授を参画させたり、阿部チームの触媒研究レベルの向上のため触媒専門家の福原教授を参画させた他、山下チームへの高圧の専門家の参画を促し、参画を得た）、さきがけの研究者からの参画（村松チームへの鎌田准教授、横井准教授）も実施した。研究環境の充実や装置の導入についても研究総括が積極的に、かつ直接的に関与し（たとえば装置の設計）、専門家の支援を得る体制を敷いて、的確な達成に導くなど、具体的な対策を直接実施した。

最も強く関与したのは、大山チームの終了と大山チームの共同研究グループの村松チームへの編入策である。領域アドバイザーと総括がサイトビジットを重ね、大山研究代表のリーダーシップの限界と目標とした研究ターゲットに有効性が認められないとの判断を下し、組織を改変することとした。新体制での研究からは新しい発見があり、ダイナミックで機敏な変更は有効であった。

途中からの人員参画を実施して成功を収めたのは、阿部チームの活動例である。中間評価時点では新概念の固体触媒を創出したものの、触媒機能の実態解明が進まず発展性が危ぶまれ、Bの評価となったが、総括の判断で前述の通り触媒の専門家である福原教授を途中参画させ、炭素析出が抑えられ長時間寿命を有する特異な触媒として確実にすることができ、事後評価ではA+の結果となった。この触媒は、企業からのアドバイザーの支持を得て、その後、企業も参画する実用的なメタンからの水素発生触媒開発プロジェクトへとつながる飛躍を見せた。

具体的な研究実施内容についても、当初の研究計画書にとらわれず、厳選することを多くの研究チームで果敢に実施した。これは大きめの研究にありがちな安全策的に研究の幅を

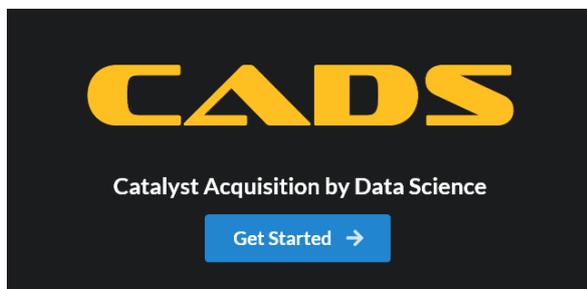
広げ、中途半端に終わる設定が多いことへの対応でもある。例として、第1期採用の阪井チームの生体触媒の研究で、メタン資化生体触媒とメタノール資化の合体から生まれるシステムに注力すべきとし、同時に計画されていた嫌気性下でのメタン反応は対象から外すことを総括判断で決定した。さらに生体触媒からの触媒機能理解を化学現象にまで繋げ、他の人工触媒の開発に繋げることを命題とした。集中した結果として新たな生体触媒の登場をもたらすことに成功したが、国際的に受け入れられていたこの分野における化学的理解のための化学的方法論に問題あることが研究期間中に判明し、メタン酸化の化学的情報提示にまで及ばず、評価はBとなった。しかし、これは革新的触媒を中心に据えた領域全体の中でのぶれない評価であった。もう一例を挙げると、伊東チームは錯体触媒を中心に据えた研究で酸化的にメタンを反応させるものであったが、旧来の錯体触媒の研究スタイルを踏襲してしまい、酸素分子ではなく活性な酸化剤を使う、またメタンのような気体を扱うのを避けて炭素数の多い反応物を選ぶ傾向が強く出る懸念があったため、領域アドバイザーの意見を統一して、酸素分子で気体の反応を、という命題の実施を強く推し進めた。この命題のもと錯体触媒のリガンド設計により、従来の研究の常識を超えたメタン分子の疎水場取り込みとメタン選択酸化を見出すに至っている。このような事例は本CREST内での研究で随所に見られ、高難度のメタン反応を積極的に進める上で必要とし、結果として成果発見に繋がったとみている。

## (2) チーム型のネットワーク研究所として研究課題間や他の研究領域、国内外の他の研究機関、異分野との連携・協力の推進

本研究領域発足当初に計画していたポートフォリオに従い、研究課題間の連携を重点的に構築した。[計算科学連携]と[オペランド解析連携]を最初に設定し、第3期までの研究チームが揃った段階で、固体触媒で中核をなすゼオライトについて[ゼオライト連携]を編成した。これにより、チーム横断で情報共有と情報交換、分析装置共有、物質合成共有をすすめ、単独のチーム内での研究進捗の限界を超える効果を期待し、実際にさまざまな効果が生まれた。

[計算科学連携]の枠組みで中心的な役割を担ったのが吉澤研究代表であり、そして触媒分野での計算科学の第一人者である小林領域アドバイザーが強い支援を行った。代表の役割は多岐に渡るが、第一にはほとんどの研究チームに設定されている計算科学グループの総元締め的なもので、各チームにおける計算科学の指南役を担い、研究の確実化、高度化を図った。これはさきがけ研究者が実施する計算科学研究にも関与し、推進を図った。同時に自らも他の研究グループが抱える問題を計算科学で解決する直接協力を実施している。これらの成果は多くの論文として結実している。加えて触媒インフォマティクス研究会を主催して、インフォマティクスに関する意見交換・国内外の研究者（企業研究者含む）との連携を構築することに努めた。その会を通して触媒分野の専門家でない高橋チームが第3期に参画する契機が生まれ、本研究領域内での触媒インフォマティクス研究の急速な進展に

繋がった。そして、すぐさま社会実装の入り口として触媒インフォマティクスのための統合データプラットフォーム「CADS: Catalysts Acquisition by Data Science」が構築された。これは実験・計算・データ科学を統合した触媒インフォマティクスとして、3期生高橋チームが触媒データベースの構築、機械学習を用いたデータから知識へ変換するプラットフォームとして設立したものである。簡単な操作で触媒インフォマティクスを実践できるプラットフォームを運用している。機械学習、データ可視化、画像解析だけでなく、世界初の実験触媒データセンターとしての機能も兼ねている。今も発展が続いている。利用者は国内外合わせて400ユーザーを超えている。CADSは複数の企業との連携をすでに進め、2つの特許を取得し、社会利用が行われている。



公開サーバー (<https://cads.eng.hokudai.ac.jp/>)

〔計算科学連携〕では、また領域会議での領域アドバイザーから、計算だけでなくこれが主導して実験検証する枠組みが必要では、との提案をうけ、吉澤研究代表が主導する「計算予測実証チャレンジ」プログラムをスタートした。研究検証のみならず、このプログラムでは各研究チームに参画する若手研究者が実施することから、若手研究者のメタン研究への思いを実現する場でもあり、交流を深める場ともなった。詳細は「(6)その他マネジメントに関する特記事項(人材育成等)」の項で記載した。

以上のように〔計算科学連携〕は極めて効果的に機能したことから、吉澤チームは本研究領域が終了するまで継続的に参画できるよう整備した。

〔オペランド解析連携〕は〔計算科学連携〕と並び、本研究領域の重要連携と位置付け、活動の推進を積極的に図った。固体触媒の深い理解と新たな設計指針を得る上で、触媒反応下での固体触媒状態解析は不可欠であり、今や世界的に見てもその進展は著しいものがある。しかしながら日本国内でのこの方面の進展は決して高くなく、意識されつつも、分析システム自体がないと進まないこともあり、懸念されているところであった。この状況を打破する上で本研究領域が果たす役割は大きいと考え、開始前からこのことの重要性を訴え、研究チームの配備を進めた。幸いにして電子顕微鏡観察の第一線の専門家が本研究領域に参画することになり、オペランドTEM解析の分析システム構築が進められた。システム開発の途中においても高度なTEM分析を研究領域内の他の研究チームに門戸を開き、研究の実施を図った。最終的に世界レベルのオペランドTEM解析、元素解析システムの構築に成功した。触媒の専門家でない研究者の取り組みのため、総括をはじめ領域アドバイザーの参画を積極的に進め、現実のものにできた。現状で今まさに色々な研究成果が出つつあるが、完成に多くの時間を要したことから、広範な連携のなかでの成果導出までには至らなかった。なお、この装置は文科省マテリアル先端リサーチインフラ事業 (ARIM) によって国内外の研究者に広く利用開放される予定である。今後の展開を期待したい。

一方、XAFS関係のオペランド解析連携は山中チームの朝倉共同研究者が精力的に参画し、高温でのメタン反応下での固体触媒分析を可能とする装置の立ち上げに成功し、村松チーム、松村チーム、片田チームと連携しつつ、有効に活用された。村松チームの研究が終了後も、放射光を用いた新しい構造組織解析法の開発研究プロジェクトへと繋がっている。

[ゼオライト連携]では、ゼオライトの持つ構造的多様性から得られる触媒機能とゼオライト合成における制御性の高さから、ゼオライトの持つ触媒としてのポテンシャルを最大限に引き出すため、本研究領域内では合成化学、構造解析化学、触媒機能解析化学、計算化学の研究者を研究チーム横断で連携し、それぞれのチームが抱える諸問題を共同で対応することも目的とした。片田チームの成果から見て取れるように、ゼオライト細孔内空間でのかなり高度複数元素の空間配置が触媒機能にとって重要であるとする結果はゼオライト連携の賜物である。この成果には、村松チームの横井グループによるゼオライト構造内元素位置解析が、また村松チームの計算科学グループによる元素間協調の解析が大きく貢献した。なお、計算科学グループは村松チーム終了後片田チームに合流し、連携を維持した。ゼオライト連携の一環として、片田グループの学生をスペインのITQへ短期派遣し、ゼオライト合成の方法論を習得させ、帰国後のゼオライト合成に活用した。

「その他連携」では、ネットワーク型の研究所であることを踏まえて、当初から分析や計算だけに連携をこだわるのではなく、研究過程で得た各種実験方法の技術を共有することを旨としており、実際に荘司チームで開発された高圧反応装置は小寺グループや阪井チームに導入され、成果を産んだ。ちなみに、この高圧反応装置のアイデアは領域アドバイザーから提案されたものに基づく。人材連携も活発になされた。例えば、伊東チームでの実験研究者が計算科学の吉澤チームに参画し、実験者の目で見ると計算科学を実施し、成果を上げ大学の助教として栄転している。同じく伊東チームの助教が山下チームに准教授として参画し、研究を推進している。

### (3) 報告会、会議等

領域マネジメントとして、各チームの研究進捗報告会をはじめ、各会議を設定、参加し、研究課題の進捗状況の把握と評価、指導を実施している。以下に実施結果を記載する。

#### ①研究総括サイトビジットと各チームの研究進捗報告会

(i) サイトビジット 合計：96件（2023/03実施予定分含む）

基本的に採択年度末から次年度春までに全研究チームのサイトビジットを行い、その後は必要に応じ適時実施した。各チームの研究進捗報告会は研究代表者の主催で定期的に行われており、積極的に年各1回は出席し、議論に参加した。また、主たる共同研究者のサイトビジットも適時実施しており、学生を含めた研究参加者とも可能な限り具体的な実験の議論・指導も現場で行っている。

(ii) 国立研究開発法人科学技術振興機構(JST)、アドバイザーとの領域運営や個別研究課題

についての打合せ 合計：11 件

(iii) 研究代表者、主たる共同研究者との個別ミーティング、研究進捗報告会 合計：22 件

## ②領域会議

領域会議の実績は以下の通り。8 回（年 1 回開催）実施した。出席者は、研究総括、領域アドバイザー、研究代表者、主たる共同研究者、研究参加者（有志）、さきがけ研究者（有志）であり、「革新的触媒」研究領域メンバーの交流、情報交換が積極的に行えるよう、親睦・交流会を含めて開催した。ただし、2020 年以降はコロナ禍によりオンライン、ハイブリッドでの開催となった。

第 1 回：2016 年 3 月 9 日(水)	14:30～17:40	TKP 市ヶ谷	38 名参加
第 2 回：2016 年 11 月 30 日(水)	14:00～18:00	TKP 市ヶ谷	45 名参加
第 3 回：2017 年 12 月 11 日(月)	10:30～18:30	JST 東京本部別館	75 名参加
第 4 回：2019 年 1 月 29 日(火)	12:30～18:50	AP 市ヶ谷	115 名参加
第 5 回：2019 年 7 月 30 日(火)	10:00～18:50	AP 市ヶ谷	113 名参加
第 6 回：2020 年 7 月 5 日(日)	13:00～18:10	Web 開催	101 名参加
第 7 回：2021 年 9 月 6 日(月)	10:00～17:15	Web 開催	86 名参加
第 8 回：2022 年 10 月 3 日(月)	12:30～17:40	ハイブリッド	78 名参加

## ③課題中間評価前の領域アドバイザー参加形式チーム会議

合計：12 件(1 期 5 件、2 期 3 件、3 期 4 件)

本研究領域では研究課題の中間評価の半年程前に、研究総括、領域アドバイザーが参加する形式の各チームの研究進捗会議を設けている。目的の 1 つは、代表者だけでなくチーム全体の研究者と評価者で議論することにより、評価者が研究進捗を理解し、より適正な課題評価をするためである。2 つめは領域アドバイザーから中間評価までに期待する進捗、研究の助言を受けることにより、目的達成に向けた研究推進をより効果的に進めることである。研究総括の判断とは異なる、または超えた意見をチーム全体に発信できる効果がある。

## ④合同チーム会議

合計：4 件(計算・計測、計算・インフォマ、実験・計測)

領域独自の取組として、採択終了後の 2017 年度以降、チーム型ネットワーク研究所として研究課題間の連携を推進するため、適時合同チーム会議等を推奨し、研究総括として参加している。合同会議では国内の他研究機関の招待講演等も設け、領域内外の連携交流も図った。

## ⑤全体チーム会議

合計：4件

若手研究者育成を目的とし、本研究領域独自の取り組みとして各チームの若手研究者を発表者とした会を設けた。研究課題間の若手研究者同士の情報交換を目的としており、同世代の人的ネットワーク作成を意識し、他の研究領域、革新的触媒、超空間領域のさきがけ研究者(有志)を口頭発表、ポスター発表で招待した。

第1回：2016年10月18日	名古屋大学荘司 Gr 主催	38名参加
第2回：2017年10月14日～15日	北海道大学長谷川 Gr 主催	77名参加
第3回：2019年10月12日～13日	九州大学吉澤 Gr 主催	49名参加
第4回：2021年3月8日	Web開催	107名参加

#### ⑥対外向けPR、シンポジウム等

(i)酸化反応討論会第50回(2017) 50周年記念企画シンポジウム

CREST&さきがけ「革新的触媒」研究領域合同シンポジウム～メタン資源利用に向けて～

□日時：2017年11月10日(金)

□場所：神奈川大学横浜キャンパス3号館3-305号室

(ii)TOCAT8-ZMPC2018(2018) コラボレーション企画 Methane conversion session

□日時：2018年8月6日(月)～8月7日(火)

□パシフィコ横浜 S会場

本会議はJST国際支援の一環を利用しており、海外から5名の著名な研究者を招聘した。会議終了後には、海外研究者とCREST研究代表者との研究動向についての議論の場を設け、計算、実験、計測と連携した新規メタン転換触媒を開発する新しい切り口について積極的に議論し、国際的な研究、領域の認知度向上を図った。

(iii)「革新的触媒」創出に向けた日独合同シンポジウム - FHI-JST Joint Symposium

Current Topics and Challenges for Innovative Catalysts

□日時：2018年10月31日(水)～11月2日(金)

□場所：ドイツのマックス・プランク協会フリッツ・ハーバー研究所

(Fritz Haber Institute(FHI) der Max Planck Institute)

(iv)座談会メタン戦略を考える

石油学会誌「ペトロテック」2016年10月号において、座談会「メタン戦略を考える」(上田渉、伊原賢、瀬戸山亨、関根泰、室井高城)を掲載し、CREST研究領域革新的触媒のPRにつとめた。

(v)2021年度CREST「革新的触媒」領域 公開シンポジウム(400名参加)

□日時：2021年6月23日(木) 10:30～17:00

□場所：オンライン (Zoom ウェビナー)

(vi)石油学会メタンセッション企画(長野)

□日時：2022年10月27日(木) 9:00~17:00

□場所：JA長野県ビル、対面 70名程度の参加

(vii)「メタンと二酸化炭素」上田監修 CMC出版 CREST研究を中心に二酸化炭素関連の研究を含めて編集中

(viii)領域総合成果報告会(実施予定)

CREST「革新的触媒」領域 公開成果報告会

メタン利用革新触媒創生への挑戦から生まれたもの」

□日時：2023年3月15日(水)

□場所：神奈川大学みなとみらいキャンパス

(ix) Catalysis Science & Technology, RSC, CREST研究を中心としたメタン触媒特集号編集中 W.Ueda, guest editor.

#### (4) 研究費配分上の工夫

各研究課題への研究費の配分額は「1. (4)採択研究課題・研究費」4頁に記載のとおりである。研究開始後、年度毎に研究計画および研究費の見直しと共に増額要求等の提出を求め、高難度のメタン研究を増進させるための強化支援を実施した。研究総括裁量経費は、追加経費により研究が明確に増進、推進すると判断された時、活用する運営とした。領域として重点的に配分した主な措置は以下のとおりである。

(i)伊東チームの伊東グループについては、本研究領域内で有用且つ活用できる装置の構想に基づき、高圧メタン反応装置導入のための予算を2017年度に増額した。従来機器では困難であったメタンの濃度を高めた状態で分子触媒の反応を追跡できるため、反応経路の解明や反応条件の最適化を推進した。

(ii)高橋チームの谷池グループについては、触媒インフォマティクスのためのハイスループット実験装置が当初予定よりも早く立ち上がったため、その成果、実績を評価し、新たな反応対象のハイスループット装置設計のための予算を2018年度以降に増額した。また、マイクロGC、質量分析計の導入にともない、2021年度に増額を行った。

(iii)吉澤チームの吉澤グループについては、領域内横断の各実験研究者への計算科学による連携が進み、共著論文を多数投稿している。この成果に基づき、新たな計算機の導入、特定期間の人件費の予算配布等の増額を実施した。また、本研究課題は2018年度の間評価において、アドバイザーからも計算科学による実験支援(反応機構の解明など)の実績について高い評価も受けており、2019年度より開始した計算科学主導の新規材料の提案(計算予測実証チャレンジ、次の(6)の項で詳細説明)につながる成果となった(計算予測実証チャレンジは、研究費として100万円~200万円を採択者が所属する各グループに上乘せする形で配分したが、上記記載は、計算予測実証チャレンジを除く、主な措置である)。

(iv)片田チームについては、2019年度および2021年度の増額によるオペランド計測機器などの拡充による反応機構の詳細解析を加速した。

(v) 松村チームは、2021 年度に増額し実験室にマスフロー式のガス混合供給装置と少量ガス GC 装置を導入に向け増額し、TEM のその場観察実験の加速拡充を行った。

(vi) 山下チームは、2021 年度 2022 年度に増額をおこない、高圧反応装置の改善による解析を加速させた。チーム内で構築した流通式高圧臨界反応装置は山口グループの固体触媒テストに活用され、顕著な成果を生んだ。

#### (5) 研究領域中間評価結果への対応

産業利用からのアドバイス体制について： 大変重要なポイントであり、研究の進捗の局面での的確な対応を実施するよう、中間評価以降備えるようにした。かなり強力な領域アドバイザーが企業から参画し、実際多くの局面で産業利用のアイデアや具体的な支援をさせていただいており、十分な対応ができたと考えている。また、各研究チームはすでに何らかの形で企業との協力関係を敷いており、研究の進捗が整えば具体化を進められる環境にあることも確認でき、新たな追加処理は実施しなかった。

海外連携について： 学生の派遣は実施したが、連携に発展させるような具体的な活動はできなかった。唯一阪井チームが積極的に外国との交流を参画者の Max Planck 研究所の嶋グループが中心となって進め、国際会議で本研究領域の活動を紹介するなど、広がりを見せつつある。またその一環として C1 Chem-Bio Economy の研究会を立ち上げ、国際連携を進めようとしている。

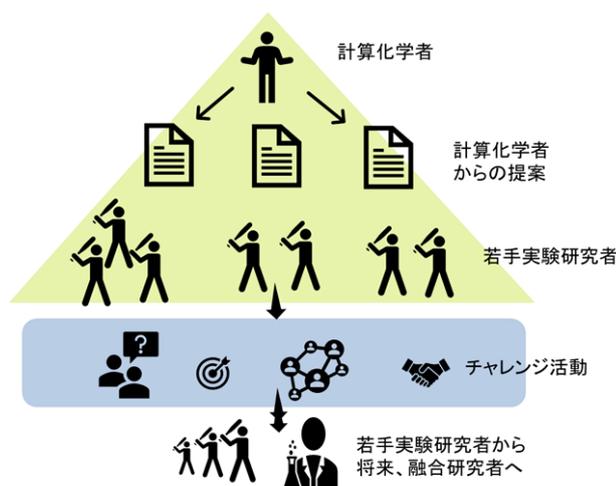
なお、海外連携を展開するためには情報発信が最も重要と考え、国際会議が開けない昨今の状況を鑑み、英国化学会の触媒専門誌でメタン触媒の特集を総括が Guest Editor として企画し、本研究領域とさきがけから多くの執筆を予定している。今春の発行を契機に、国際連携を含めた新たなステージに立てることを期待している。本研究領域は終了するが、ここから次の芽が出ることを期待している。

知的財産取得の強化策について： メタン反応触媒研究ではゼロから 1 の研究が多く、さらに難度が高いため、明確に 1 として判断できるまでの成果になるまでには多くの研究が必要で、必ずしも十分に権利化できたとは考えていない。領域中間評価以降、領域会議でこの点は回数をかけて議論し、強力に推進を図ることを決定し、各チームもそれを受け積極的に特許化に向けプロセスを踏んだ。しかし、多くのケースで時期尚早（たとえば大学判断）との判断があり、さらなる研究を以て達成しようとしているのが現状である。決して緩んでいるのではなく、メタン触媒のもつ難度の高さがこの面でも表れていると思われる。当然のことながら、明確な成果として得られたものは漏らさず権利化プロセスを進めている。

社会実装への取り組み： 企業からの領域アドバイザーの強力な支援を得て、知財が明確になっているものについては社会実装を積極的に進めており、すでに複数の事例で具体化している。また、研究方法や装置に関して新しく生まれた知財は本研究領域内部ですでに活用されているが、今後広く利用される段階が訪れるものと期待している。

## (6) その他マネジメントに関する特記事項(人材育成等)

本研究領域における若手研究者の育成支援制度として、計算科学が先導する実験研究者への挑戦として、計算予測実証チャレンジを設定した。計算科学をもとにして提案されたメタン反応に活性化触媒物質状態の検証チャレンジを各研究チームの若手研究者に投げかけ、意欲ある研究提案を募集した。そして2019年度では7件採択した。この試みはCREST事業でも新しい取り組みであり、以下に趣旨、取り組みの流れを記載する。



### 1. 計算予測実証チャレンジについて

本研究領域「革新的触媒」では各チームの触媒創成と共に、実験、計算、計測、インフォマティクスの領域内連携を推奨する取り組みを進めている。研究領域発足から4年が経過し、連携は具体的な成果に結びつきはじめ、1期生吉澤チームでは自身の計算科学と実験チームとの連携により、共著論文をいくつか発表した。研究総括、アドバイザーはその実績を評価し、連携の一步進んだ深化を図るため、計算科学が先導する実験課題の立案を薦めている。「計算予測実証チャレンジ」は上記に基づく企画で、従来の実験主導の計算科学支援から脱し、計算科学が先導する実験課題検証を推進するもので、実験研究者と共に新たな触媒創出のアプローチを提示することを目的とする。研究総括は本取り組みを若手研究者の育成の一環として計画しており、領域内の多くの応募を期待している。

### 2. 課題の募集・選考

2-1 募集対象となる課題(詳細は知財に関与する事項のため領域外は非公開とした)

以下3つを設定した。複数ある場合は優先順を明記すること。

連携代表者：吉澤チーム(九州大学 先導物質化学研究所 教授)

1. 研究テーマ Ni-ゼオライト触媒によるメタン酸化

2. 研究テーマ  $\text{PtO}_2$ によるメタンの活性化

3. 研究テーマ 合金触媒によるメタンの二量化

#### 2-2 募集期間

2019年3月4日(月)～2019年5月10日(金)AM(厳守)

#### 2-3 予算規模

100万(直接費)/件

選考評価により増額する可能性がある。採択後、所属グループに増額される。

#### 2-4 採択予定数

5 件程度(1 課題につき 1~2 人採択)

#### 2-5 応募要件

CREST 応募要件に準じるが、対象は本研究領域革新的触媒内の参画者とする。

必ず、提案者が所属する研究代表者(主たる共同研究者に所属する場合は、主たる共同研究者からも)の許可を取ること。

#### 2-6 募集選考の流れ

3 月 領域公募開始

5 月 10 日(金)正午〆切り

5 月末 選考結果案内

6 月 増額手続き、研究開始

6 月 30 日 キックオフ(九大)

10 月 12 日~13 日 全体チーム会議で領域内にも進捗紹介予定

2 月下旬~3 月 まとめ会予定

#### 2-7 研究実施期間

2019 年 6 月から 2020 年 3 月までの期間を予定。

### 3. 実施概要

2019 年 6 月 30 日に九州大学先導物質化学研究所にてキックオフミーティングを実施し、採択者 7 名の今後の研究計画や進捗状況を発表した。

その後、2019 年 10 月 12 日、13 日の本研究領域、さきがけの若手研究者による研究会(@九州大学西新プラザ)にて中間発表を実施した。さらに、2020 年 2 月 23 日に九州

大学先導物質化学研究所にて最終報告会を実施した。2020 年度も昨年の採択者の内、4 名の若手研究者が引き続き実証実験を実施した。2020 年 9 月 25 日にはオンラインにて情報共有会を、2021 年 1 月 14 日に採択者からの実験結果や進捗状況を受け、随時追加の計算や個別のディスカッションを実施した。

## 計算予測実証チャレンジ

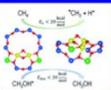
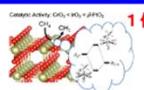
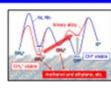
**計算予測実証チャレンジ**

採択者 7 名

- ・ 藤下 瑞帆 助教 (東北大学)
- ・ 大船 彰道 研究員 (工学院大学)
- ・ 矢部 智宏 助教 (東京大学)
- ・ 高垣 敦 准教授 (九州大学)
- ・ 西口 ひかり 氏 (埼玉大学 M1)
- ・ 井口 翔之 助教 (東京工業大学)
- ・ 小林 浩和 特定准教授 (京都大学)



実証チャレンジキックオフ R1.6.30 九大伊都

<p><b>提案 1. Ni-zeolite によるメタン水酸化実験</b></p> <p style="text-align: right;"><b>3 件</b></p>     <p>藤下助教 (村松T)    大船研究員 (片田T)    矢部助教 (山下T)</p>	<p><b>提案 2. PtO2 (110)面でのメタンの活性化実験</b></p> <p style="text-align: right;"><b>1 件</b></p>   <p>高垣准教授 (大山T)</p>	<p><b>提案 3. 2成分合金によるメタンの活性化実験</b></p> <p style="text-align: right;"><b>3 件</b></p>     <p>西口さん (阿部T)    井口助教 (山中T)    小林特定准教授 (松村T)</p>
--	--	---

#### 4. 研究概要

1. 研究テーマ「Ni-ゼオライト触媒によるメタン酸化」研究では、計算科学により Cu-ゼオライト触媒よりメタンから生成したメタノールの吸着が弱く、定常的に触媒反応が進行すると予想され、それを実証すべく、Ni-ゼオライトの合成を展開したが、Cuのように二核の酸化物クラスター形成をもたらす合成化学が未熟で、メタノールの生成は確認できたものの、所定の目標は達成できなかった。ゼオライト連携の中での助言がある中ではあったが、触媒合成化学の進展を図る必要が再認識された。このことに鑑み、触媒物質の合成化学がより進歩したヘテロポリ酸体を使ってNi酸化物クラスター形成を行う方向に方針転換し、Ni置換ポリオキソメタレート触媒でメタンの選択酸化を達成した。

2. 研究テーマ「 $\beta$ -PtO<sub>2</sub>によるメタンの活性化」では、直接目的の触媒物質は合成できず、また熱安定性に乏しいものであることから、触媒化学の常套手段である酸化物への担持を試み、その選択としてルチル構造のPtO<sub>2</sub>に合わせて、チタニアやアルミナを選択し、検討を実施した。興味深いことにアルミナ担持Ptを特殊な酸化処理した触媒は極めて低温でのみメタンを酸化してメタノールを触媒的に与えることがわかった。かなり特殊な触媒状態形成の処理をして初めて活性が出るもので、計算科学が先導して触媒物質状態を規定したことの効果は計り知れないものであった。

3. 研究テーマ「合金触媒によるメタンの二量化」では、合金のマテリアルズインフォティクスとメタン二量化プロセスの素段階解析から提案された複数の合金触媒系を試験した。提案された合金のうちPt-Mg系は触媒として全く検討されたことがなく、また合成が難しいとの先入観から対象とされてこなかったが、計算科学の先導で検討が始まり、幸運にも阿部チームが合金調製の専門家で、いとも容易く合金を合成し、活性試験に供した。炭素析出が少なく、メタンを二量化しエタンを与えた。試験には特殊な装置が必要で、反応の実施には山中チームが実施した。若手研究者同士の連携の賜物である。

## 6. 研究領域としての戦略目標の達成状況について

### (1) 研究成果の科学的・技術的な観点からの貢献

本研究領域は、メタン変換のための革新的触媒の創出を第一目標としており、その達成レベルに関係なく見いだされた触媒や触媒システムは極めて高い学術レベルを内包していることに間違いは無いと考えられる。しかし、触媒分野では学術レベルと同時にメタン変換であればその反応成績の達成レベルも同時に評価の対象となり、水準を単純なレベルで評価できない。従って、本研究領域では、物質の新規性やシステムの新規性を重要視し、学術に深みを入れて、学術的なインパクトを追求している。従って、いたずらに性能を追いかけないように研究総括としては留意した。すなわち、既存の触媒の後追いをし、過剰な条件を設定して変換レベルを上げる試みは、本研究領域では主たる研究方向とするものではなく、リスクはあるがハイリターンで将来多方面の科学技術の進歩に資するゼロから一の成果が得られるよう領域全体として一致して取り組んだ。実際、そのような形でさまざまな角度から取り組みを実施し、これまでにない成果、発見を得た。その多くはこれまで報告のない新触媒例、新反応システムであったり、新しい触媒開発方法論の構築であったり、次代の触媒研究につながる分析の方法論である（詳細は後述）。例えば、従来に無い生体触媒の実用的活用方法の提示による当該分野への貢献、触媒インフォマティクスの分野の先陣を切って構築し、近年著しい当該分野の進展に大きく貢献、錯体触媒のリガンドデザインによる従来の予想を超える機能発現の結果による触媒革新の貢献、これまでにない新固体物質状態の合成的制御によるメタン反応の達成事例を多く提示することができ、固体触媒開発の今後の進むべき新しい方向性を提示したことによる貢献、などが挙げられる。ただし、そのそれぞれにおいて更なる検証と展開を図らなければいけない研究課題も多く残しており、決して確固たる革新的触媒を達成したとは言えない。ただし、各研究チームは本研究領域終了後も引き続き検討を重ねて発展させる予定であり、一部においては社会実装の形で深掘りしつつ、真の革新的触媒へと発展するものになると期待している。

以上の成果は、メタン変換のための革新的触媒創出とメタン変換反応の実現という共通項がある中で、本研究領域内の研究チームの単独成果と言うよりは、チーム間連携を通じた相乗効果により進展した研究によるものであることを強調したい。一例として、2期の伊東チームで進められたCu錯体触媒による過酸化水素酸化での水の効果が、1期の吉澤チームの計算科学によって明らかとなり、研究の進展でメタンの過酸化水素による酸化が実現した。さらに、この時のメタンの酸化は通常メタン圧力条件下では進行しないが、1期の荘司チームで開発されたメタン高圧バッチ反応装置が導入され、反応の実現に繋がった。おそらく単独チームの研究では実現しなかったと予想される。さらに3期の山下チーム超臨界条件研究の参画へつながり、メタン高圧流通反応装置が構築され、固体Cu触媒によるメタンからメタノール合成が飛躍的に進展した。一言で言えば「ワンチーム」の考えで進めることは、本研究領域のような高難度の反応に取り組む上で必要であると計画当初から想定

していたが、想定を超えるものであったと言える。別の見方をすれば、複雑性を増す固体触媒開発のみならず、広く化学現象全般を制御する学術と技術を成立させる上で多様性のある研究チームの階層的連携組織を成立させることは大変重要であることを認識させた。その意味で、本研究領域での事例は、今後の科学研究の進め方を考えさせる上で、一定の貢献があるものと判断している。

## ①課題ごとの貢献

### ・阿部チーム：高効率メタン転換へのナノ相分離触媒の創成

#### 1. 反応その場電子顕微鏡によるコーキング発生機構の解明

雰囲気制御超高压透過型電子顕微鏡を駆使し、メタンドライリフォーミング(DRM)反応( $\text{CH}_4 + \text{CO}_2 = 2\text{CO} + 2\text{H}_2$ ) 雰囲気中における酸化物担持金属ナノ粒子触媒の挙動を直接観測した。炭化水素転換技術における普遍的かつ最大の課題である固体炭素の析出と蓄積による触媒失活と反応ガス塞栓(コーキング)が、担持体表面から剥離し周囲を這い回る(粒子マイグレーション)金属ナノ粒子を成長点とするカーボンナノチューブの伸長によって引き起こされることを明らかにした。カーボンナノチューブの成長がマイグレートする金属ナノ粒子によって促進されることは報告されているが、粒子マイグレーションと担持触媒のコーキングとの関係を直接観測によって実証したのは、本研究が世界初である。

#### 2. 根留触媒概念の創出

伝統的な担持触媒では、金属相とセラミックス相のヘテロ界面は単純な異相の貼り合わせに過ぎず、粒子マイグレーションによるコーキングや粒子凝集を避けられなかった。合金のナノ相分離現象を利用し、異相同士を植物の毛根のように絡み合わせる(この絡み合い構造を表現するにあたり、従来の担持触媒(金属/セラミックス)に対し「根留触媒(金属#セラミックス)」なる語を創出)ことにより、ヘテロ界面のトポロジ的不動化が可能であること、及び、ヘテロ界面の不動化により粒子マイグレーションに起因する触媒機能の低下を抑止できることを明らかにした。実際、この触媒は、DRM反応で従来極めて進行し易い炭素析出を大きく抑制し、長時間水素生成を可能にした。

#### 3. 光触媒 DRM を介したイオニクスと触媒の融合

光子のみをエネルギー源とする DRM 反応：光触媒 DRM を、チタン酸ストロンチウム担持ロジウム触媒(Rh/STO)において、世界にさきがけて実現した。水を電子源としない乾式反応で、かつ、アップヒル反応を実現する光触媒は、これが世界初である。これを契機に最近追従研究が多く論文発表されるようになってきた。光触媒 DRM においては、金属表面と酸化物表面が  $\text{CO}_2$ 還元と  $\text{CH}_4$ 酸化に対する反応場としてそれぞれ一対一に対応しており(反応場分離)、かつ、 $\text{CO}_2$ 還元によって生じた酸素原子がヘテロ界面を超えて酸化物格子中を拡散(イオニクス)、最終的に  $\text{CH}_4$ 酸化に使用されることを明らかにした。光触媒 DRM では、熱平衡状態での逆水性シフト反応



が起こらず、水分を含まない理想的な合成ガスを得ることができることから、反応場の分離とイオニクスが副反応との競合を避けるうえで決定的に重要であることが明らかになった。

#### ・阪井チーム：合成生物学によるメタン酸化触媒の創製

##### 1. メタン酸化酵素 pMMO 触媒原理の解明

下記3に記載した成果をもとに新たに開発した FACS を用いた活性評価、スクリーニング法により、メタン酸化活性を持つ superMOB 見出し、このものにおいて、結晶構造モデルを基に膜結合型メタン酸化酵素 (pMMO) 活性部位近傍のアミノ酸部位特異的変異体を構築し、顕著に活性が上昇する変異体、活性を失う変異体の取得に成功した。従来、変異体酵素のメタン酸化活性の測定には、大腸菌で発現させた凝集体のリフォールディング、酵素生成など、膨大な労力と時間のかかる方法しかなかったが、本法はメタノールセンシング細胞を用いた極めて効率的なスクリーニングであることが実証された。これは、選抜した superMOB 候補変異体の生化学的検討と変異体立体構造の解析により、メタン酸化触媒原理の解明に進む上で大きな前進であった。しかしながら、国際的に認められていたメタン酸化によるメタノール生成の触媒活性評価系に本質的な問題がある事が研究期間中に論文発表され、新たな評価系を確立することは困難で、メタノール生成の触媒機能解析に至る化学的検討はできなかった。

##### 2. SDIMO をもつ非メタン酸化性細菌によるメタン酸化能の発見

従来、メタン酸化菌以外に、一部の細菌が sMMO に類似した SDIMO をもつことが知られてはいたものの、メタン酸化活性を持たないとされてきた。本研究で、ある非メタン酸化性細菌の SDIMO がメタン酸化活性 (ならびにメタノール生成活性) を持つことを初めて見出した。メタン酸化活性を持つ SDIMO 遺伝子の同定、育種系の確立と変異体導入による触媒部位の特定などにより飛躍的な触媒能向上を図っている。これにより菌体触媒反応によるメタノール生産、あるいは、メタノール菌との共培養によるメタンから有用物質生産が実現できる道筋ができる。

##### 3. メタノールセンサー細胞開発の分子基盤となるメタノール感知因子の同定

FACS を用いた高活性 superMOB のスクリーニングに用いるメタノールセンサー細胞のメタノールセンシングの作動原理、ならびに感度向上に向けた改良を行うための分子基盤を解明し、細胞表層タンパク質 Wsc ファミリータンパク質が、メタノール誘導性遺伝子発現制御に関わる重要なメタノールセンシング因子であることを世界で初めて明らかにした。

#### ・荘司チーム：生体触媒の誤作動状態を利用するメタンの直接的メタノール変換

##### 1. フッ素原子をもたない第三世代デコイ分子の開発

アルキルカルボン酸のカルボキシル基をアミノ酸で修飾した第三世代デコイ分子を合

成してベンゼンの水酸化反応を検討し、フッ素原子を含まないデコイ分子であっても P450BM3 を活性化できることを明らかにした。単純なアルキルカルボン酸であっても、アルキル鎖長を短くして活性部位に中途半端に取り込ませると、本来の基質とは異なる反応が進行することを世界で初めて実証した。フェニルアラニンとプロリンを連結したジペプチドにアルキル鎖を修飾した C7-L-Pro-L-Phe が高い酸化活性を示し、ベンゼンは毎分 259 回転で水酸化され、P450BM3 一分子当たり 4 万回転を超える触媒活性を示した。

## 2. P450BM3 の結晶化

P450BM3 の良質な結晶を再現性良く作製する手法はこれまでになく、多くの結晶ドロップを仕込み、確率論的に当たりを見つける従来の結晶作製法が適用されてきた。1974 年に初めて P450BM3 が報告されてから 45 年以上もの間、研究者は P450BM3 の結晶化の困難に直面してきたと思われる。結晶化を促進するデコイ分子の発見によって、誰もが簡単に結晶を短時間で作製できるようになり P450BM3 の構造と機能の理解が飛躍的に進むものと期待できる。基質結合部位の空間において、低分子配位子をへムに配位結合させることで結晶の質を改善する手法は多く報告されているが、結晶化促進デコイ分子の効果は桁違いであり、シード法の適用によって、ほぼすべての P450BM3 を結晶化できるなど、圧倒的な破壊力とインパクトのある手法であるといえる。

## 3. ハイブリッド金属酵素

蛋白質連結酵素を駆使することによって、還元ドメインを有する全長のシトクロム P450BM3 のへムをマンガンプロトポルフィリンに置換したハイブリッド金属酵素を作製することに成功した。マンガンを中心金属とする場合においても、酸素分子を還元的に活性化可能で、長鎖脂肪酸が水酸化活性されることを世界で初めて明らかにした。プロパンの水酸化反応では、1 級アルコールが通常のへムの場合に比べて多く生成されることから、マンガンを活性中心とする特徴ある反応系の開発に成功したといえる。

## ・山中チーム：反応場分離を利用したメタン資源化触媒の創成

### 1. インジウム金属液体触媒によるメタン活性化

インジウム金属液体がメタンの C-H 結合を選択的に活性化してメチル種を生成し、メチルのカップリングにより選択的にエタンへ転換する特異的触媒作用があることを見出した。類似の触媒作用は低融点、高沸点の金属である、ガリウム、スズ、ビスマスでも観測された。インジウム金属液体は予想に反し、大きな塊（液滴）の方がメタンの選択的二量化に活性があり、固体触媒の常識とは異なる触媒作用を示すことを明らかにした。

### 2. 金属液体によるメタン活性化モデルを計算化学で予測

インジウム金属液体がメタンの活性化に有効である事実から、その触媒作用機構について計算化学的に検討をおこなった。インジウム金属液体は反応温度の上昇とともに運動が激しくなり、熱的に活性化された配位不飽和なインジウム種が発生し、メタンを活性化しうることを提唱した。この極限モデルとしてインジウム単核から 4 核種までメタン

との相互作用について計算した結果、インジウム 2 核種のみメタンの C-H 結合を発熱的に切断しうることを提唱した。

### 3. 1173K の高温における in-situ EXAFS 測定法の開発

インジウム触媒は 1173K の高温で最大活性を示すが、このような高温において触媒の構造解析に威力を発揮するオペランド XAFS 測定が可能なセルは開発されていなかった。試行錯誤の結果、インジウム触媒が活性化する 873K から 1173K まで測定可能な熱ストレスを吸収できるオペランド XAFS セルの開発に成功した。このセルで実際にシリカ担持インジウム触媒をメタン流通下で観測し、インジウムの金属状態が維持された液体状態であることを観測できた。

## ・吉澤チーム：計算科学が先導するメタン酸化触媒の開発と触媒設計技術の創成

進歩著しい計算科学を武器に理論研究をコアとした実験研究とのハブ型連携研究を実施すると共に、触媒開発の新しい研究手法の創成と当該分野の将来を担う理論研究者の育成にも取り組んだ。

研究開始当初から理論研究をコアとした実験研究とのハブ型連携研究を実施し、①膜結合型メタンモノオキシゲナーゼ及び関連する銅錯体モデルの反応性、②金属ゼオライトの構造と反応性、③酸化物表面の構造と反応性、④触媒インフォマティクスによる二成分合金の探索、に関する研究を行った。また、本領域及び関連するさきがけ領域の若手実験研究者に計算科学の基礎およびノウハウを伝授することで、理論にも強い実験研究者の養成を行ってきた（研究課題⑤に対応）。

本研究の新展開として、2019 年度から「計算予測実証チャレンジ」を開始した。これは、当チームの理論研究の成果である、(1) Ni 含有ゼオライト、(2) 白金酸化物、(3) 触媒インフォマティクスによる二成分合金、の三課題について、公募により選定した領域内の 7 名の若手研究者との理論先導型の連携研究である。この「計算予測実証チャレンジ」は、理論と実験の双方向研究を促し、次世代の触媒材料設計指針の創成につながると期待される（詳細は(6)その他マネジメントに関する特記事項で記述）。

当チームの取り組んできたメタンの直接酸化に関わる、気相反応、酵素反応、酵素モデル反応、および金属ゼオライト反応に関する理論的研究が高く評価され、米国化学会の招きで、*Accounts of Chemical Research* 誌 (IF = 21) に膜結合型メタンモノオキシゲナーゼと銅含有ゼオライトの関連性に関する成果を発表した。また、Springer 出版社からの依頼で、単行本「Direct Hydroxylation of Methane」(吉澤執筆編集) を出版した (2020 年出版)。以上のことは当チームの当該研究分野への貢献に対する国際的な高い評価の表れと考えている。

## ・伊東チーム：後周期遷移金属オキシラジカル錯体によるメタンの酸化反応

### 1. 後周期遷移金属-オキシラジカル錯体の創製と酸化機能の解明

精密に設計された配位子を用いて合成した遷移金属錯体と過酸化物（過酸化水素や有機過酸）との反応により、銅やニッケルのオキシラジカル錯体の調製に成功し、これらを用いたメタンの触媒的酸化反応を達成した。また、ルテニウムのカルベン錯体を用いた水のプロトン共役電子移動酸化によるルテニウム-オキシラジカルの調製にも成功し、その酸化活性を評価した。これらの成果はいずれも、後周期遷移金属-活性酸素錯体の化学にブレークスルーをもたらすものである。

### 2. 反応場の設計に基づくガス状不活性アルカンの触媒的酸化反応系の構築

ガス状基質の取り込み場として、金属中心の近傍に疎水基を導入した新規配位子を設計・合成し、それを用いて合成した遷移金属錯体を触媒とする不活性アルカンの触媒的酸化反応について検討し、アルコール生成物の選択性を高めることに成功した。また、鉄ポルフィリンの配位子にカチオン性の置換基を導入したり、配位子を工夫して銅錯体を三核化したりすることで、触媒活性の大幅な向上を達成した。

### 3. 機能性固体触媒の設計とメタン酸化への応用

メソポーラスシリカの表面を化学修飾し、配位子固定化触媒、カチオン錯体固定化触媒、アニオン錯体固定化触媒などを設計・合成し、それらをメタン酸化へ応用した。特に、フッ素系疎水基を導入したメソポーラスシリカと疎水性配位場を導入した鉄錯体を組み合わせることで、メタンの酸化活性とアルコール選択性の大幅な向上を達成した。

## ・大山チーム：酸素原子シャトルによるメタン選択酸化反応プロセス開発

本研究課題は、NO と酸素分子を反応させ、NO<sub>2</sub> としたのち、これを酸化剤としてメタンに酸素移行させて生成物とし、NO が再生され、再度酸素分子と反応させる酸素原子シャトルの反応機序を成立させる研究であった。比較的穏和な条件で、メタンから酸素化生成物を与えることを見出している。しかしながら、NO が消費されないで完全に元に戻る条件、すなわちシャトル系成立を厳密に検証することが困難で、かつ酸素分子が直接反応して完全酸化生成物を与える反応が避けられず、さらには生成物のさらなる酸化の進行を抑制することが極めて難しく、シャトル系の限界が明らかとなった。これによりシャトル系のさらなる展開、発展は限定的であると判断し、シャトルの方向の研究課題は2019年度で収束させた。

一方、これらの研究を進めていく中で、シャトル系が成立する必要条件とは異なる条件で新しい反応を見出したことから、この触媒系の展開研究に傾注することとし、関連研究グループを村松チームに合流させ、特徴ある進展を推進した。

## ・村松チーム：メタンから低級オレフィンへの直接転換を可能にする金属超微粒子を担持した複合酸化物触媒材料の創製

### 1.1. メカノケミカル法による Ce 含有ゼオライトの合成と低温メタン転換反応用触媒としての応用

メカノケミカル法により合成した Ce-MFI 中の Ce 種は、XAS や STEM 解析から、単純な水熱合成法や含浸法でゼオライト中に形成させた Ce 種と比較して、より均一かつ高分散に導入されることを明らかにした。高分散 Ce 種は、露出面積が大きいために担持金属種との協奏作用を発現し易く、この構造によって Pd/Ce-MFI 触媒および Pd, Co/Ce-MFI 触媒が特異的な低温 C<sub>2</sub> 生成活性を示すことを見出した。このような触媒構造に関する知見から、ゼオライト結晶中に高分散な化学種を作り出すための手法としてのメカノケミカル法の優位性を明らかにした。

### 1.2. 金属含有ゼオライトにおける位置・状態制御の重要性

ゼオライトの空間内に Fe, Ni, Co, Cu, Pt, Ag などの金属種を導入した「金属含有ゼオライト触媒」は脱水素、水素化、酸化、NO<sub>x</sub> 選択還元など様々な反応に活性を示すため、注目されている。一方で、触媒性能面において、金属種的位置・状態の重要性は認識されているにもかかわらず、困難さ故に「制御する」といった視点で学術的な研究はなされてきてはいない。本研究を通じ、金属含有ゼオライトに関して、金属種のナノ空間内での位置、そして状態・サイズを制御する手法の開発に成功した。今後の展開が大きく期待できる。

### 1.3. リン酸鉄ナノ粒子触媒によるメタン酸化反応機構の解明

リンゴ酸を用いたゾルゲル法により合成したリン酸鉄 FePO<sub>4</sub> ナノ粒子触媒がメタンからホルムアルデヒドへの選択酸化に高い触媒活性を示した。完全酸化反応のみが進行する酸化鉄 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 触媒とは異なる反応性を表面の酸化力と酸塩基性の両面から検討を行い、酸化還元能を有する均質な Lewis 酸点 Fe<sup>3+</sup>と弱塩基点 PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>の存在が温和な条件でのメタンの C-H 結合活性化と酸化生成物の逐次酸化抑制効果に重要であることを明らかとした。

### 2.1. NO/NO<sub>2</sub> シャトル機構によるメタンの低温変換（合流後）

担持白金触媒によるメタンからのジメチルエーテル（DME）生成について、変調励起分光法によるオペランド解析による吸着種の観測および酸素同位体実験を実施し、NO からの吸着 nitrate 種を経由するメタンへの NO<sub>2</sub> 由来の酸素の取り込みが進行することを示した。酸素のみを酸化剤とすると DME は全く生成しなかった。さらに、DME 生成反応中に NO（あるいは NO<sub>2</sub>）の消費がないことから NO/NO<sub>2</sub> シャトル機構によってメタンから部分酸化生成物である DME が高い選択性で生成するとした。

### 2.2. 白金触媒によるメタンからシアン化水素への低温変換（合流後）

一酸化窒素を酸化剤としてアルミナ担持白金触媒を用いることで 300°C よりメタンからシアン化水素が生成した。NO 解離、C-H 活性化、C-N カップリングを低温で進行させることができた。400°C において 100 時間安定して収率 1% を与え、触媒活性は同温度領域に

において非平衡プラズマを用いた先行例よりも 1 桁以上高かった。また高温での従来プロセスとは異なる反応機構で進行していることが示された。本研究成果は従来にない新たな反応系であることがわかった。

### 2.3. 新規複合酸化物触媒によるメタンからホルムアルデヒドへの低温変換（合流後）

ガルバニックディスプレイメント法を利用して、これまでにない複合酸化物を導入した担持 Pd-Ru 複合酸化物触媒の調製に成功した。XRD および XAFS による解析から、この複合酸化物 PdRuO<sub>3</sub> はペロブスカイト系構造を有していると考えられた。ペロブスカイト構造を有する複合酸化物は強い誘電性および酸素イオン伝導性を持つため、本プロジェクトで発見されたペロブスカイト型 PdRuO<sub>3</sub> は、格子酸素を効果的に利用することが可能な触媒であり、今後の新規触媒および新材料の開発に貢献できる。

## ・片田チーム：メタンによる直接メチル化触媒技術の創出

メタンを原料とする特徴的な触媒反応であるベンゼンメチル化について、先駆的解析法を用いて反応機構を明らかにし、活性点と反応場の設計指針を得た。求められる活性点の構造を得るためにゼオライト合成や遷移金属種担持の足場を固め、気相雰囲気をも最適化することを合わせて反応速度と選択性を目標まで向上させることができた。

### 1. MFI ゼオライト中の Co イオンの位置とその Lewis 酸性およびメタンによるベンゼンのメチル化反応

Co/MFI ゼオライトの UV-vis 分光により、 $\alpha \sim \gamma$  に分類される二価イオン交換サイトの中で、10-ring に突き出す  $\alpha$  位置へは、Co<sup>2+</sup> は高担持量領域または Mg や Pb 共存下でよく担持されることがわかった。メタンによるベンゼンメチル化 ( $\text{CH}_4 + \text{C}_6\text{H}_6 \rightarrow \text{H}_3\text{C}-\text{C}_6\text{H}_5 + \text{H}_2$ ) 活性は  $\alpha$  位置 Co<sup>2+</sup> の量に依存していた。開いた空間に突き出す Co 種が活性と結論される。脱水素触媒に対するゼオライト担体の微細構造の効果がこれほど顕著となったのは初めてで、後の反応機構の解明や活性サイト・反応場の設計の端緒となった。

### 2. 昇温反応法による金属イオン交換型 MFI ゼオライト触媒のメタンによるベンゼンのメチル化反応評価

昇温反応法によって MFI ゼオライト上のさまざまな遷移元素の幅広い温度領域におけるメタン-ベンゼン混合気流中での反応性を調べた。貴金属は低温でメタンの脱水素活性を持ち、低温で還元されるとメタンの脱水素を優先して促進するようになり、高温では選択性が低く劣化も速い。Co は酸化状態を保ったままメタンによるベンゼンのメチル化を選択的に促進することがわかった。元素の特徴と反応機構の大筋が明らかとなり、第一原理計算による特異な反応機構解明につながった。

### 3. Co/MFI ゼオライト触媒を用いたメタンによるベンゼンのメチル化反応

773K においてゼオライトに遷移元素を担持してメタンによるベンゼンのメチル化を試みた。多くのゼオライトと遷移元素の組み合わせの中で Co/MFI のみ触媒活性を示した。同位体を用いてメタンの炭素がトルエンのメチル基の炭素になっていることを実証し、

メタンによるベンゼンのメチル化によってトルエンが生成したことを確認した。流通反応で定常的に生成物を得て、かつ同条件で同位体を用いてメチル反応の進行を証明したのは世界初である。

#### ・高橋チーム：実験・計算・データ科学の統合によるメタン変換触媒の探索・発見と反応機構の解明・制御

##### 1. 機械学習を用いた触媒開発方法論の確立

機械学習を用いた触媒開発方法論を確立した。ハイスループット実験データと機械学習を組み合わせることにより、450°Cで活性なメタン酸化カップリング (OCM) 触媒 Ga-Sr-Yb-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を発見し特許出願をした。また新規触媒として Mo-Cs-W/BaO も発見され、C<sub>2</sub> 選択率 83.1%・収率 16.2%を実現した。触媒科学において世界で初めてディープラーニングを適用し 20%近くの収率を出す文献未報告の OCM 触媒「TiKW-SiO<sub>2</sub>」の発見も達成した。少ないデータに対して機械学習を適用し、高いメタノール選択率とターンオーバー数を持つ銅ゼオライト触媒の実験実証にも成功した。このように機械学習による触媒設計方法論を世界に先駆けて実践した。

##### 2. 触媒遺伝子の提案

OCM 触媒ビッグデータにおいて、組成の異なる触媒が類似した触媒活性・反応条件応答性を示すことが発見された。そこで信号解析・パターン認識を使い、触媒の活性や反応条件応答性に示す特有の記号を与えた触媒遺伝子を提案し、従来の元素記号によるものとは異なる触媒の新たな記述方法を確立した。この触媒遺伝子と自然言語処理を用いることにより、同等の触媒性能を持つ触媒を容易に特定できるだけでなく、同じ遺伝子内の元素を組み替えることにより同性能の触媒を設計することも可能になる。またバイオインフォマティクスで使用される解析手法の適用も可能になり、触媒開発の新しい方法論を提案した。

##### 3. 触媒ネットワーク方法とデータ可視化による平均的な触媒情報変換

計算化学からの触媒設計は困難を極める。理由として計算化学では局所的な触媒活性を見ているが実験では複雑な触媒活性の平均情報が結果として得られているという仮説が考えられる。そこで独自開発したハイスループット計算を実行し、約 1 万の触媒表面でメタン酸化反応を計算しデータ化した。この計算データに対して開発した触媒ネットワーク方法とデータ可視化を組み合わせることにより平均的な触媒情報に変換することに成功した。発見された高活性触媒 Co-Ag-TiO<sub>2</sub> 等は特許出願し、成果は Journal of the American Chemical Society で発表した。

#### ・松村チーム：原子分解能その場観察解析に基づく触媒機能の原理解明と革新的触媒創製

##### 1. Ni 触媒ナノ粒子上のコーキング過程の前駆現象を解明

環境 TEM による Ni ナノ粒子触媒上のメタン分解過程の原子分解能その場観察により、

Ni ナノ粒子触媒では 300°C 付近の温度でメタンの分解が起こり、六方晶の炭素固溶体  $\text{NiC}_x$  が形成され、粒子形状が著しく変化することを初めて明らかにした。400°C 以上に温度が上昇すると六方晶  $\text{NiC}_x$  の表面にグラファイト層が生成して粒子全体がグラファイトに覆われるコーキングが生ずる。

## 2. $\text{CeO}_2$ ナノ粒子の原子スケールでの還元挙動の解明

様々な触媒反応において触媒担体として用いられる  $\text{CeO}_2$  ナノ粒子について、ガスセルホルダーを用いて各温度で水素還元処理を行った直後に電子損失エネルギー分光 (EELS) によりスペクトラムイメージング測定を行うことにより、それぞれの反応条件における  $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$  の分布状態の原子スケールでの可視化およびスペクトル変化を明らかにした。

## 3. メタン改質触媒の耐コーキング被毒のマテリアルデザイン

Ni の平滑 (111) 表面、(111) 表面ステップ、ならびに Ru (0001) 表面におけるメタン分解反応の特性を、第一原理計算によって解明し、Ni (111) ステップはメタン分子から原子状炭素まで分解するのに対して、Ni の平滑 (111) 表面や Ru 表面では  $\text{CH}^*$  までの分解に止まることを明らかにして、Ni 触媒で顕著なコーキング被毒が Ru では抑制される電子論的起源が解明された。この結果から Ni の表面ステップの触媒活性をブロックせず、耐コーキング被毒のマテリアルデザイン法を提案した。

## ・山下チーム：超臨界メタンを基質兼媒質とした均一系・不均一系触媒プロセスの開発

### 1. メタンと酸素からホルムアルデヒドおよび CO を与える触媒系

鉄 2 核ポリオキソメタレート (POM) 触媒をシリカに担持したものを固体触媒として用いることで、600°C、0.1 MPa にてメタンと酸素からホルムアルデヒド (TON > 4000、約 1% 収率) および CO を与える触媒系を見いだした。反応条件下では安定で長寿命な  $\text{FeO}_x$  サブナノクラスターを形成していることを確認した。

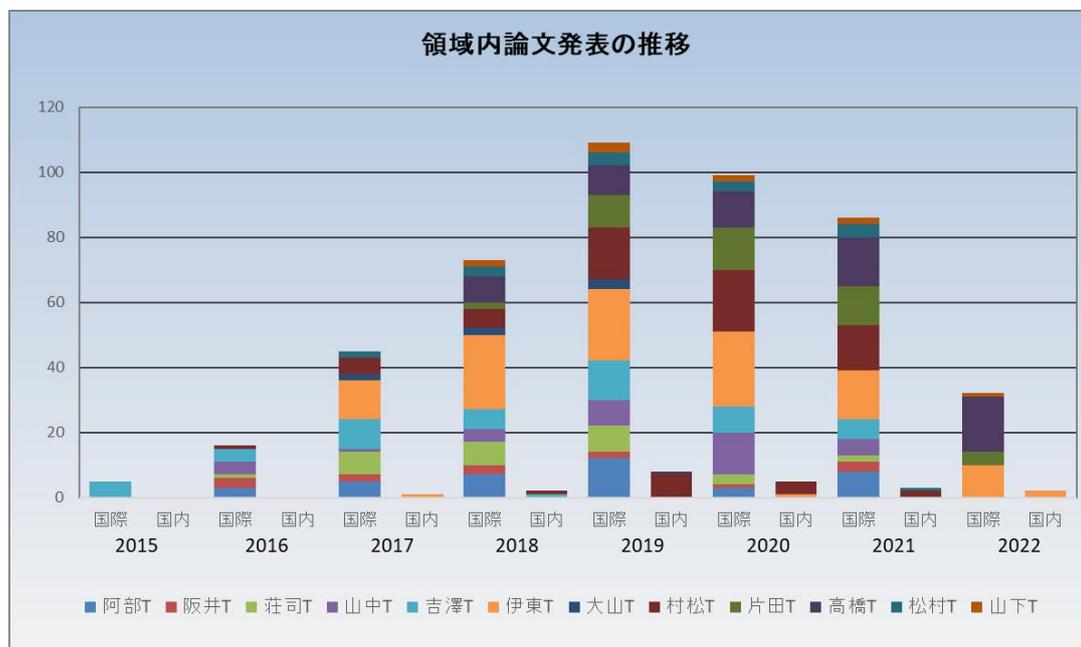
### 2. 誘導体合成によるアルカンの酸化触媒

さまざまなヒドロキシイミドについて計算化学を用いて O-H 結合解離エネルギーを求め、標準的に使用される N-ヒドロキシフタルイミド (NHPI) よりも大きな O-H 結合解離エネルギーを持つ誘導体をいくつか合成、これがアルカンの酸化触媒として利用できること、O-H 結合解離エネルギーに応じて触媒活性が向上すること、シクロヘキサンの酸化では従来触媒よりアジピン酸の選択率が高いことを見いだした。

## ②各チームの研究成果の国際的水準及び領域全体としての国際的水準

研究成果として、国際論文誌への掲載が 465 件 (1 期 : 165 件、2 期 : 173 件、3 期 : 127 件)、国際会議での招待講演数が 303 件 (国内は 202 件) に達しており、国際的な水準は高いと思われる。特に戦略目標を特定分野に比較的集中した研究であることを鑑みると大変活動的であると強調しておきたい。革新的触媒の創出に挑むため、新しいアプローチをチーム内・外で実施し、さらには触媒インフォマティクス、計算科学と実験の連携、計測と実験の

連携など世界に先駆けた研究手法に取り組んだ成果を発表した。これらについて個々チームからそれぞれ特徴ある成果を、Nature 系の論文誌や Angew. Chem. 等にも発表し、また触媒系の論文誌であっても注目を集めるなどしており、研究の質の高さを物語っている。



## (2) 研究成果の社会的・経済的な観点からの貢献

本研究領域は、触媒的メタン転換反応の実現を基本目標に、上述の通り、従来に無い方法による生体触媒の高機能化、先陣を切って進めた触媒インフォマティクスの分野の構築、錯体触媒のリガンドデザインによる高度化、新固体物質状態の合成的制御などによるメタン反応の達成事例を多く提示することができた。それぞれの持つ学術的貢献は今後大きく進むことが期待されるが、同時に社会的、経済的貢献にも次第に結びつくものになると確信している。例えば、第1期の阿部チームでは、新規な根留触媒はメタンからの水素合成のプロセス触媒としての可能性がすでに実証されつつあり、昨今のカーボンニュートラルの潮流にしっかり貢献できる素地ができつつある。同時に進められた光 DRM 触媒は太陽光を効果的に利用してメタンから水素合成が可能となる次世代的なプロセスと目され、設立が期待されている。同じくメタンからの水素合成で、山中チームで開発された酸化的メタン改質反応の触媒システムはすでに実用レベルにあり、その実用化の検討のなかでコンパクトシステムとしての実現が期待される。阪井チームでの研究は C1 Chem-Bio Economy の研究会の立ち上げを通して、天然ガス資源をバイオマスに転換して食糧生産を増強するという新しい循環型社会の構築ということにつながり、社会実践を目指している。一方、吉澤チームの進めた本領域研究期間内の計算科学の実践は固体触媒における計算科学研究を大きく推進することになり、学术界のみならず企業触媒研究者の研究方法論としてかなり広まった

と認識している。同様のことは高橋チームが推進する触媒インフォマティクスも本研究領域が進行するのと同期してさまざまな局面でその有効性が認識され、社会の多くで利用され始め、具体的な成果がではじめている。牽引役を果たした高橋チームの貢献は大きく、国際的に高く認知されている。全ての研究が以上のような状況にはないが、高難度のメタン反応研究を通して生まれた触媒機能や研究方法論はオリジナル性が高いので、本質的に社会貢献できる潜在力を持っていると考えられ、継続的な研究の中で科学と技術が確立し、マッシングを通して社会に貢献する日が来ることを確信する。

実用的活用方法の提示による当該分野への貢献について、以下に記載する。

#### ①特許出願実績と状況

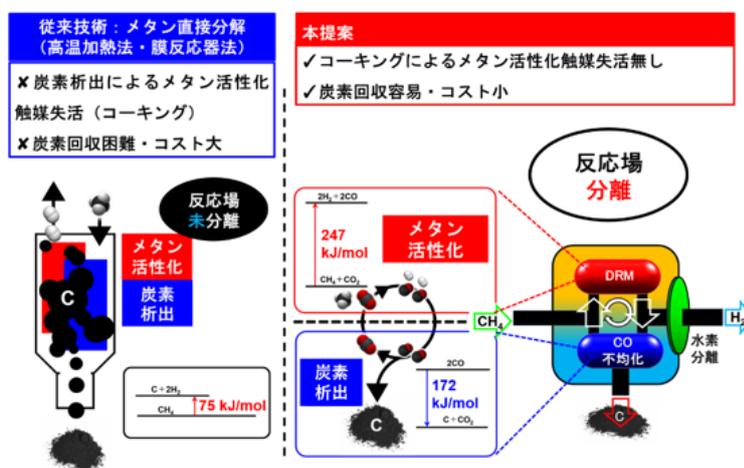
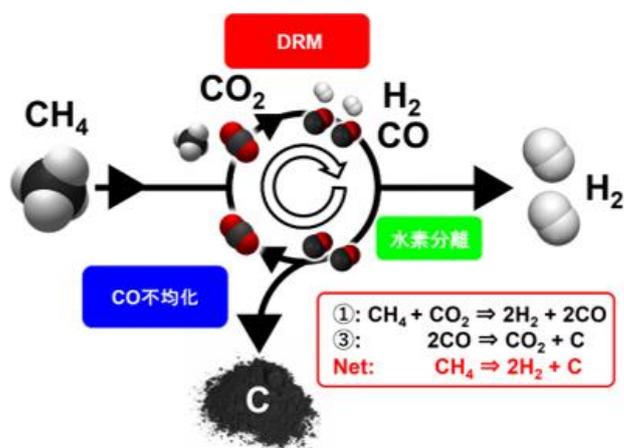
各チームからの特許出願数は22件に達している。仮説に基づき従来にない触媒を組成し、効果の検証、機構の解析を実施するため、出願までに要する時間は比較的長い。現状は国内出願に着手した段階のため国際出願にはまだ至っていないが、今後、特許戦略に応じて国際出願も推奨したいと考えている。

#### ②産業や社会への展開・実装の状況

代表的な本研究領域発の社会実装プロセスにある例について、以下に記載する。

##### (i) 根留触媒

$\text{Ni}\#\text{Y}_2\text{O}_3$  の社会実装に向けて、阿部チームに民間企業を加えたチーム編成で国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) 先導研究「水素利用等先導研究開発事業／炭化水素等を活用した二酸化炭素を排出しない水素製造技術開発」に採択 (研究題目：メタン活性化と炭素析出の反応場分離による水素製造)。本 CREST 成果を踏まえたシステム構築とフィジビリティ研究が開始される運びとなった。同 NEDO 先導研究構想の一部を、以下に示す。



(ii) 触媒インフォマティクスプラットフォーム

触媒インフォマティクスのための統合データプラットフォーム「CADS: Catalysts Acquisition by Data Science」の開発に成功し、2019年度より本格運用を開始している。URLは(<https://cads.eng.hokudai.ac.jp/>)である。現在まで登録アカウント数76、平均月8000程度のアクセス数となっており、国内外の大学・企業など幅広い方々に利用されている。現時点でのCADSの機能は「触媒データの公開・管理」「データの可視化」「機械学習による学習・予測」が実装されており、ウェブ上でマウスのクリック1つでインフォマティクスの一連の解析を行うことが可能となっている。

このような触媒データセンターはこれまでになく、世界中からアクセスがあり、企業から実装したいという問い合わせが多数ある。また本CRESTで発表済みの触媒データ(ハイスループット実験データ・その他のOCMデータ)などはCADSで無償公開しており、多くの研究者にデータを使用して頂ける状態としている。CADSに関する論文はRSCのReact. Chem. Eng. 2020, 5(5), 903-911で発表し、プレスリリースも行っている。

**世界最大の触媒データベース**

**16の機械学習**

**原子モデル作成**

**15の可視化**

**周期表**

**画像解析**

**今後は計測データの導入予定**

**クリックだけで操作**

メタン変換技術の展開や社会実装は上述の他に、本領域研究によって得られた物質やプロセスをベースに更なる具体化が見込まれる。

### ③課題ごとの貢献

#### ・阿部チーム：高効率メタン転換へのナノ相分離触媒の創成

##### 1. 低温活性長寿命 DRM 触媒：Ni#酸化物の創製

前駆体合金のナノ相分離を利用することによって、ナノ繊維状の金属 Ni 相と酸化物相の絡み合いからなる根留触媒である Ni#Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> および Ni#MgO を創製した。開発した根留触媒は、いずれも、従来の技術限界を超える 450℃の低温領域において、コーキングを被ることなく、1000 時間を超える長期間にわたり安定的に DRM を駆動した。さらに、Ni#Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末を星形成型アルミニウム箔にディップコートすることにより 1 インチ級直径 Ni#Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 構造体化触媒を製造、低温から 600℃までの繰り返し温度プロセスおよび 600℃における 60 時間駆動における安定動作（熱力学平衡値の 1/2 のメタン転換率）とコーキング耐性を実証した。従来の貴金属（Ru または Rh）触媒は、すぐれたコーキング耐性や長寿命、高度なメタン転換効率を実現する（JP 4738024 他多数）が、貴金属は希少かつ高価な「レアメタル」資源である。Ni#Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> や Ni#MgO は高価・希少な貴金属を一切使用していない（Ni 価格～2 円 g<sup>-1</sup>；Y 価格～30 円 g<sup>-1</sup>；Mg 価格～1 円 g<sup>-1</sup>；貴金属価格>1000 円 g<sup>-1</sup>）。

##### 2. DRM 光触媒による光子エネルギー供与 GHG 資源化

UV 照射下の Rh/STO 材料によって、光子エネルギーのみによる GHG (Greenhouse Gas)

である CH<sub>4</sub> ならびに CO<sub>2</sub> の資源化が可能であることを世界で初めて実証した(光触媒 DRM)。また、可視光領域に吸収帯を持つ酸化窒化タンタルを担持体に利用することにより (Rh/TaON)、可視光照射下における光触媒 DRM を世界に先駆けて実現、太陽光を原資とした「ソーラーDRM」に道を開いた。さらに、Rh-Ce 前駆体合金から合成された Rh#CeO<sub>2</sub> 光触媒により、Rh/STO を 30% 上回る世界最高の光触媒 DRM 転換率と 100 時間以上活性低下を被らない高度な安定性を実現した。

## ・阪井チーム：合成生物学によるメタン酸化触媒の創製

### 1. superMOB の創製

pMMO の可溶性最小触媒領域 (spmoB) 遺伝子内に pmoA 由来の断片をもつ自然界にはない一次配列 (unique sequence) を有する遺伝子を合成し、メタノールセンサー酵母内で発現させたところ、活性型に折り畳まれて (superfolder)、メタン酸化活性を持つことを見出した。さらにある 1 アミノ酸変異体が、発現タンパク質量が変わらないにもかかわらず、野生型より高比活性を示すことを見出した。これは計画当初に設定した superMOB の 3 条件を満たしており、メタン酸化菌とは異なる宿主でメタン酸化活性を発現した最初の成功例で、superMOB の創製に成功した。今後、さらなる高活性触媒の開発と、細胞触媒創製への展開が期待できる。

### 2. メタノール生成を触媒する酵素工学スクリーニング系の構築と実証

セルソーターを用いた 1 細胞解析により、 $\mu\text{M}$  オーダーのメタノール濃度を検出できる高感度メタノールセンサー酵母細胞を新規に開発し、ペクチンメチルエステラーゼを例にして、メタノール生成酵素活性の検出に適用できることを実証した。本研究成果は、細胞あたりのメタノール生成酵素活性の強弱を本センサー細胞により可視化、分別できることを示すものであり、superMOB 取得のためのスクリーニングに活用できるだけでなく、バイオマスからのメタノール生産などに有用なメタノール生成酵素の高機能化のための酵素工学スクリーニング系に利用可能である。

### 3. メタノール細菌の細胞外多糖成分による穀物増収効果

メタノール細菌を出穂後のイネにスプレー散布することにより、イネ収量を増大させる技術の開発に成功した。メタノール細菌の生菌体だけでなく、死菌体や細胞壁多糖成分によっても増収効果が認められた。superMOB を導入したメタノール細菌が構築できれば、メタンを原料として生産した菌体や化学合成できない細胞壁多糖成分を生産することが可能となることから、本研究成果は、天然ガス資源をバイオマスに転換して食糧生産を増強するという新しい循環型社会の構築を提言するものである。

## ・荘司チーム：生体触媒の誤作動状態を利用するメタンの直接的メタノール変換

### 1. プロパン/エタン水酸化活性の大幅向上

高速液体クロマトグラフィー (HPLC) のポンプと空のカラムを用いる微小高圧反応装置

を開発し、プロパンとエタンの P450BM3 による水酸化活性を大幅に向上させることに成功した。50 気圧の反応条件で、エタンの水酸化活性は毎分 28 回転、総触媒回転数 280 回に達した。エタン水酸化反応は、 $^{13}\text{C}$  エタンを用いて  $^{13}\text{C}$  エタノールが生成されることで確認した。プロパンの水酸化活性は、毎分 2200 回転にまで加速されることを明らかにした。メタンの反応についても触媒的な反応の確認が進んでいる。

## 2. 無損傷結晶構造と時間分解結晶構造解析に成功

X 線自由電子レーザー (XFEL) を駆使する結晶構造解析によって、P450nor の無損傷結晶構造と時間分解結晶構造解析に成功した。P450nor は微結晶の作製が可能であったため XFEL を測定することができたが、P450BM3 については微結晶の作製が難しく研究はほとんど進まなかったが、結晶化促進デコイ分子の開発によって、微結晶の作製が可能となり、P450BM3 についても X 線のダメージの無い無損傷結晶構造を世界に先駆けて明らかにすることができた。

## 3. デコイ分子を利用する菌体内反応

デコイ分子を利用する菌体内反応が、P450BM3 (CYP102A1) の本来の持ち主である巨大菌でも可能であることを明らかにした。天然に存在する菌体である巨大菌の脂肪酸の代謝経路をデコイ分子によって変更可能であることを示した世界初の研究成果である。巨大菌は、土壌細菌として広く土壌に存在するため、デコイ分子を土壌に散布するだけでベンゼンなどの環境汚染物質を分解できる土壌洗浄の用途に利用可能であることも示した。このような取り組みは世界的にも珍しく、同様の取り組みは皆無である。菌体をそのまま用いる物質変換手法としての利用も検討している (特開 2020-092674 環境浄化剤)。

## ・山中チーム：反応場分離を利用したメタン資源化触媒の創成

### 1. インジウム金属液体触媒によるメタン脱水素多量化反応

シリカ担持インジウム触媒がインジウム金属液滴としてメタンの C-H 結合を活性化し、エタンを選択的に生成し、エタンからエチレンやベンゼン等の有用炭化水素に転換することを見出した。最高活性は 1173K と高温のため気相で逐次的に脱水素されてカーボン析出も進行するが、本触媒系は定常活性を示し、有用炭化水素と水素の製造が可能なることを実現している。反応温度を 873K まで低下させた条件では、エタンと水素が両論的に生成し、選択率 100% でメタンが転換されることを実証した。本システムはマイクロ細孔性ゼオライトに固定したインジウム触媒でも成立することを確認した。この系では細孔によるメタンから生成する水素分離効果により効果的に反応が進行していることを見出し、発展形が生まれている。

### 2. モルデナイト担持コバルト・微量ロジウム触媒による選択的メタン部分酸化

メタンの部分酸化による一酸化炭素と水素の高速選択合成に活性なモルデナイト担持コバルト・微量ロジウム触媒を開発した。本触媒は  $\text{SV} = 1, 200, 000 \text{ mL h}^{-1} \text{ g}^{-1}$  の空時間に対しても転化率 90% 以上の高転化率を示す超活性触媒である。主触媒はコバルト金

属であり、微量ロジウムはコバルトを金属状態に維持する水素種を供給する協奏的作用で機能する。コバルト微粒子の金属状態の維持が重要であり、触媒作用の分化、言い換えれば反応場分離と協奏により実現されている。このような高次機能は他の触媒反応への応用も期待できる。

### 3. 炭素拡散型反応場分離触媒の開発

これまで Pd 金属膜に代表されるように水素透過を利用した膜触媒の可能性が報告されている。本研究で炭素原子の拡散現象を用いた炭素透過型膜触媒の開発を行った。膜片側でメタンを完全分解して水素分子と炭素に変換し、炭素は鉄金属膜中を拡散して反対側に湧き出した。この湧き出し炭素を利用した化学転換反応の開発を行った。

## ・吉澤チーム：計算科学が先導するメタン酸化触媒の開発と触媒設計技術の創成

### 1. 触媒インフォマティクスの展開

金属表面におけるメタンの C-H 結合活性化について、第一原理計算にインフォマティクス手法を取り入れて、これまでに 280 種類の二成分合金の反応性解析を行っている。その中から有望な合金候補を見出すことに成功した。この研究は、「計算予測実証チャレンジ」により実験的に検証した。この成果は理論と実験の双方向研究を促し、次世代の触媒材料設計指針の創成につながると期待される。

### 2. 「計算予測実証チャレンジ」の実施

今までに当チームの理論計算によって得られた、(1)Ni 含有ゼオライト、(2)白金酸化物、(3)触媒インフォマティクスによる二成分合金、の三課題について、公募により選定した領域内の 7 名の若手研究者との理論先導型の連携である「計算予測実証チャレンジ」を開始した。この試みは、理論と実験の双方向研究を促し、次世代の触媒材料設計指針の創成につながると期待される。

### 3. 実験研究者との連携および触媒理論研究者の育成

材料開発における計算科学の進歩は著しい。メタンの直接酸化を目指して、計算科学を武器とした実験研究との連携研究を実施し、多くの共同研究を実施した。若手実験研究者に計算科学の基礎およびノウハウを伝授することにより、理論にも強い実験研究者の養成を行った。

## ・伊東チーム：後周期遷移金属オキシラジカル錯体によるメタンの酸化反応

触媒化学分野の重要な研究課題として、不活性アルカンの酸化に加え、芳香族化合物の直接水酸化反応がある。本研究領域で開発した Cu、Ni、Os などを用いた触媒システムは、ベンゼンの水酸化反応にも有効であることが判明している。また、OsO<sub>4</sub> と過酸化水素を組み合わせた系を用いてベンゼンから直接ポリフェノール系樹脂の合成は前例のない反応であり、基礎化学的にも注目に値する。これらの反応（ベンゼンの直接水酸化と直接ポリフェノール樹脂の合成）は、メタンの酸化と並んで、有機工業化学的にも重要なプロセス

であり、その成果を更に発展させることができれば、革新的酸化反応触媒の更なる発展に大きく貢献するものである。

メタンの反応については、さまざまな新たな学術的発見をしっかりとした反応成績として具現させるまでには至っていない。

### ・村松チーム：メタンから低級オレフィンへの直接転換を可能にする金属超微粒子を担持した複合酸化物触媒材料の創製

#### 1-1. 低温メタン転換反应用ゼオライト触媒開発

メカノケミカル法により合成したゼオライト担持金属触媒は、比較的温和な条件下（400℃以下）でのメタン酸化カップリング（OCM）反応を実現した。メタンを基幹化学品へと転換する触媒開発は、古くから盛んに行われているが、そのほとんどは、700℃以上の高温を必要とするため、環境調和型のプロセスとは言い難い。今回得られた成果は科学技術イノベーションに大きく寄与する成果であると言える。

#### 1-2. 高難度選択酸化反应用ゼオライト触媒プロセスの開発

今回、最も困難なメタンの部分酸化反応により、メタノールならびに低級オレフィンを合成するゼオライト触媒開発を実施し、世界に先駆けて構成元素位置制御法を開発し、活性サイトを自在に制御可能な“ゼオライト触媒調製化学”を切り拓き、ゼオライト科学分野にパラダイムシフトをもたらすことができた。これにより同じ反応条件で、従来報告されている反応成績を大きく上回る触媒を得た。このような実績は、工業材料として幅広く用いられているゼオライトを基盤にしていることから、我が国の産学官にとっても極めて重要であると考えている。ここで得られた知見をベースにすることで、ゼオライトの用途展開の拡大、ならびに多様な炭化水素の有効活用に資する触媒プロセスの開発に寄与することができる。

#### 1-3. エクセルギー解析法とプロセス設計手法の開発

物質・エネルギー生産システムを、4種の熱力学基本プロセスモジュールで構成された物質フロープロセスとエネルギー流れのみのエネルギー変換モジュールの組み合わせで表記する新しいエクセルギー解析法を開発した。また、プロセスに必要な最小仕事  $W_{\min}$  が、エクセルギー破壊の総和  $\sum T_0 S_{\text{gen}}$  をエネルギーとする廃熱  $Q_w$  になってシステムから取り出されることを明らかにした。これによって自己熱再生が最も省エネであることが証明され、最適プロセスを簡単に設計できるようになった。

#### 2-1. 白金系触媒による低温メタン酸化（合流後）

一酸化窒素を酸化剤とし白金触媒を用いることでメタンの C-H 活性化が低温で進行できることがわかり、完全酸化の二酸化炭素だけではなくシアン化水素が選択的に生成した。アンモニア生成を経由せずに、窒素から窒素酸化物が副生するプラント等があれば、化成品製造に有用なシアン化水素を低温で合成できる可能性を示した。

#### 2-2. 新規複合酸化物触媒によるメタンからホルムアルデヒドへの低温変換（合流後）

本プロジェクトで開発した担持 Pd-Ru 複合酸化物触媒の格子酸素は、300°C程度の低温領域で、メタンの選択酸化によるホルムアルデヒド生成に有効な酸素種であることが見出され、酸素のみを酸化剤とした場合でもホルムアルデヒドを高選択的に生成させることに成功した。このメタンの直接選択酸化プロセスは、畜産場やバイオエタノール発酵残渣などの分散型の小規模メタン発生施設では、効率的ホルムアルデヒドの製造に期待できる。

### 2-3. 膜反応器の利用による酸素の供給（合流後）

膜技術は、相互に適合しない反応ガスの安全な混合を必要とするプロセスを可能にする。これには、あらゆる種類の酸化プロセスが該当する。膜リアクターでは、連続反応の選択性を制御するために、制御された反応ガスの添加も可能である。高圧の酸化雰囲気下での操作を可能にするシリカベースの膜を開発した。この技術を実装し膜反応器の性能を検討したところ、従来の充填層反応器よりも高性能が実証された。

## ・片田チーム：メタンによる直接メチル化触媒技術の創出

### 1. アルキル基含有芳香族炭化水素の製造方法及びアルキル化反应用触媒

Co 触媒によるメタンによるベンゼンメチル化において、MFI ゼオライト担体中の骨格内 Al 濃度によってメタン基準選択率が大きな影響を受け、濃度を 1.3 から 0.3 mol kg<sup>-1</sup> に下げると選択率が 30 から 50%程度に上昇した。この触媒で反応場設計を行い、高温・高接触時間条件ではベンゼン基準収率 13%、酸素遮断・高圧条件では目的反応速度 0.15 kg<sub>toluene</sub> kg<sub>cat</sub><sup>-1</sup> h<sup>-1</sup> とメタン基準選択率 75%を両立（本課題の数値目標達成）などの成果に至った。

### 2. コバルトイオン交換型 ZSM-5 と ZSM-11 触媒によるメタンによるベンゼンのメチル化

ZSM-5 (MFI)に近く、より多くの α 部位を有するトポロジー構造 MEL を持つ ZSM-11 を合成し、Co を担持した触媒 (Co/MEL) がメタンによるベンゼンメチル化に高い活性を示した。[Al]が同等の Co/MFI より Co/MEL 上の α 型 Co<sup>2+</sup>量が多く活性は高かった。Co/MFI で見出された α 型 Co<sup>2+</sup>の設計指針に基づいて高活性をもたらすゼオライトを合成。有用な反応に対する高い活性を得た希有な例となった。

### 3. メタンによるベンゼンのメチルにおける MFI 型ゼオライト中の Co イオン触媒に及ぼす異元素の添加効果

Co 種が均一に担持されるような条件(高[Al] MFI ゼオライト上の Co<sup>2+</sup>のイオン交換)による担持量と共存元素の触媒活性への影響を調べ、Co 種に複数の種類があること、活性な種は限られた条件で形成され、共存元素のない条件では Co/Al = 0.3~0.5 で主に形成されること、Mg や Pb を共存させると選択的に形成されることなどを見出した。後にこれが α 部位の Co であることがわかり、活性サイト設計による活性・選択性の向上に発展した。

## ・高橋チーム：実験・計算・データ科学の統合によるメタン変換触媒の探索・発見と反応機構の解明・制御

### 1. 統合データプラットフォーム「CADs: Catalysts Acquisition by Data Science」

触媒インフォマティクスのための統合データプラットフォーム「CADs: Catalysts Acquisition by Data Science」の開発に成功し、2019年度より本格運用を開始している。URLは(<https://cads.eng.hokudai.ac.jp/>)である。現在まで登録アカウント数400、平均月8000程度のアクセス数となっており、国内外の大学・企業など幅広い方々に利用されている。CADsの機能は「触媒データの公開・管理」「データの可視化」「機械学習による学習・予測」「画像解析」が実装されており、ウェブ上でマウスのクリック1つでインフォマティクスの一連の解析を行うことが可能となっている。このような触媒データセンターはこれまでになく、世界中からアクセスがあり、企業から実装したいという問い合わせが多数ある。CADsに関する論文はRSCのReaction Chemistry & Engineeringで発表し、プレスリリースも行っている。

### 2. OCMハイスループット実験装置

1日に4000点もの触媒データを自動取得可能なOCMハイスループット実験装置の開発に成功し、過去30年で蓄積されたデータ数を一桁上回る12000点ものデータをわずか3日で取得することに成功した。この規模の触媒データはこれまでに存在せず、世界初である。得られた触媒ビッグデータを機械学習などによって分析し、実験条件によるC<sub>2</sub>収率の変化や鍵となる触媒組成を突き止めることに成功した。CRESTでは11万を超えるOCM触媒データを取得し、世界最大の触媒データとなっている。成果はACS Catalysisなどに掲載され、プレス発表も行った。

### 3. 触媒ビッグデータのネットワーク化

機械学習では実現し難い「理解を伴う触媒インフォマティクス」を推進するため、オントロジーを用いた触媒ビッグデータのネットワーク化を提唱した。ハイスループット実験データにおいて、触媒組成、実験条件、C<sub>2</sub>収率の関係性を知識のネットワークとして可視化することにより、元素組み合わせや反応条件とC<sub>2</sub>収率の関係性が提示され、理解を伴う触媒設計を可能にした。このネットワークを「触媒世界地図」と名付け、K-V-Eu-BaO等のC<sub>2</sub>収率20%を超える触媒の実験実証にも成功した。成果はRSCのChemical Scienceに採択され、「pick of the week」にも選出された。本方法論は触媒開発の新たな方法論を提案するものであり、多くの触媒データに適用可能な技術である。

## ・松村チーム：原子分解能その場観察解析に基づく触媒機能の原理解明と革新的触媒創製

### 1. 反応ガス雰囲気中に置かれた触媒のオペランド原子分解能観察手法の確立

MEMS隔壁型ガスセルホルダーに大気圧の反応ガスを流通させ、触媒反応を質量分析器とガスクロマトグラフ装置で追跡しながら、その場電子顕微鏡観察およびエネルギー分散型X線分光、電子損失分光による状態解析を原子分解能で行える装置および技術を確

立した。開発した手法は、メタン変換反応のみならず、さまざまな触媒反応に応用可能であり、今後の触媒開発に大きく寄与すると期待される。既にいくつかの大学、企業からガス雰囲気その場観察の相談を受けるなど、応用の広がりを見せつつある。

## 2. 低温でコーキング抑制の可能性

上記のようにメタンガス雰囲気での高分解能電子顕微鏡観察から、Ni ナノ粒子触媒は300°C付近の低い温度で十分にメタン分子を分解する高い活性を有しており、かつ分解によって生じた炭素原子はNi 粒子に溶け込んで六方晶の炭素固溶体を形成することが世界で初めて明らかになった。このことは、Ni 触媒で300°C付近の低温で表面コーキングによる活性劣化を抑えたメタン変換反応を実現する可能性を示唆する知見である。

## 3. 触媒表面での分子反応速度論的解析

ガス分子の触媒表面での吸着・分解・脱離過程を、第一原理計算によるエネルギー準位解析に加えて、イジング模型による速度論的モンテカルロ計算を行うことで、触媒表面での原子・分子レベルの局所的反応速度論についての第一原理的な解析を可能にし、メタンのドライリフォーミング過程について温度やガス分圧依存性と共に触媒活性に有効に働く触媒表面状態を初めて明らかにした。この成果は、同過程を実現する高効率触媒の開発に原理的な大きな指針を与える。

## ・山下チーム：超臨界メタンを基質兼媒質とした均一系・不均一系触媒プロセスの開発

### 1. Cu<sub>16</sub>核 POM 触媒を用いるメタン酸化

銅 16 核 POM 触媒の TBA 塩を SO<sub>4</sub>-ZrO<sub>2</sub> に担持した後に Cs ヘカチオン交換、酸性処理した後、これを固体触媒として高压流通式反応装置で反応させると、400°C、8 MPa の低温・高压条件でメタンと酸素からメタノールを約 40%の選択率、TOF>4000 h<sup>-1</sup>で与えることを明らかとした。

### 2. N-アリアルリンカーを有する PCP ピンサー Ir 錯体の合成と触媒応用

新規に合成した PNCNP ピンサー Ir 錯体が低温 (50-100°C) でシクロオクタン脱水素化反応の触媒として利用可能なことを見いだした。DFT 計算により N 原子による架橋が律速段階である C-H 切断過程を加速していることを見いだしている。将来的にはポリオレフィン系高分子を分解する触媒の一成分として利用できる可能性がある。

## (3) その他特記事項

### ①国内外の主な顕彰・受賞等

- ・ 朝倉清高：触媒学会学会賞（学術部門） 触媒学会 2016/3
- ・ 藤田武志：平成 28 年度日本顕微鏡学会奨励賞 日本顕微鏡学会 2016/6/15
- ・ 吉澤一成：Brown and Williamson Award Louisville University 2016/9/11
- ・ 辻雄太：福井謙一奨励賞 京都大学福井謙一記念研究センター 2017/1/27

- ・ 阿尻雅文：KONA 賞 ホソカワ粉体工学振興財団 2017/03/09
- ・ 井上亮平：Poster Award Supergreen 2017, the 10th International Conference on Supercritical Fluids 2017/12/03
- ・ 小島隆彦：平成 30 年度錯体化学会学術賞 錯体化学会 2018/07/01
- ・ 吉澤一成：錯体化学会貢献賞受賞講演 錯体化学会 2018/7/29
- ・ 藤田武志：Highly cited Researcher 2018 Clarivate Analytics 社 2018/11/27
- ・ 山中一郎：触媒学会学会賞（学術部門） 触媒学会 2019/3/16
- ・ 小林広和：触媒学会奨励賞 触媒学会 2019/3/16
- ・ 鈴木康介：石油学会奨励賞 石油学会 2019/05/28
- ・ Muhammad Haris Mahyuddin：2019 Catalysis Science & Technology HOT Articles 英国王立化学会 2019/6/12
- ・ 阪井康能：酵素応用シンポジウム特別表彰 天野エンザイム(株) 2019/6/14
- ・ 吉澤一成：名誉教授 Institut Teknologi Bandung 2019/10/18
- ・ 藤田武志：Highly cited Researcher 2019 Clarivate Analytics 社 2019/11/19
- ・ 小島隆彦：第 37 回学術賞 日本化学会 2020/01/07
- ・ Muhammad Haris Mahyuddin：BCSJ Award 日本化学会 2020/2/15
- ・ 山下誠：日本学術振興会賞 日本学術振興会 2020/02/18
- ・ Yusuke Yoshida, Hiroyuki Iguchi, Yasuyoshi Sakai & Hiroya Yurimoto.：日本農芸化学会 Bioscience, Biotechnology, and Biochemistry 2019 論文賞 日本農芸化学会 2020/3/25
- ・ 高橋啓介：Outstanding Reviewers RSC Physical Chemistry Chemical Physics (PCCP) 2020/03/27
- ・ 鈴木康介：令和 2 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰若手科学者賞 文部科学省 2020/04/27
- ・ 藤田武志：Highly cited Researcher 2020 Clarivate Analytics 社 2020/11/18
- ・ 緒方英明：日本結晶学会学術賞 日本結晶学会 2020/11/27
- ・ 阿尻雅文：第 73 回日本化学会賞 日本化学会 2021/01/07
- ・ 伊與木健太：研究奨励賞・内藤雅喜記念賞 化学工学会 2021/03
- ・ 鈴木康介：2020 年度触媒学会奨励賞 触媒学会 2021/03/16
- ・ Tomoyuki Takeya, Miyabi Yamakita, Daisuke Hayashi, Kento Fujisawa, Yasuyoshi Sakai & Hiroya Yurimoto.：日本農芸化学会 Bioscience, Biotechnology, and Biochemistry 2020 論文賞 日本農芸化学会 2021/3/18
- ・ 朝倉清高：日本化学会学術賞 日本化学会 2021/3/20
- ・ 山口晃：The 17th Honda-Fujishima Prize 電気化学会 2021/3/23
- ・ 朝倉清高：表面科学会論文賞 表面科学会 2021/4/11
- ・ 高橋啓介：Best Contribution Award STAM Methods 2021/12/03

- ・ 菅沼学史：石油学会奨励賞 石油学会 2022/02/24
- ・ 吉澤一成：分子科学会賞 分子科学会 2022/09/19
- ・ 伊東忍：錯体化学会賞 錯体化学会 2022/09/28

## ②報道、プレスリリース

### 【阿部チーム】

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
1	TOP Researchers	あらたな触媒の発見により、エネルギー問題の非効率を解決する	2018/7/31
2	毎日新聞	温室効果ガスを有用ガスに効率よく合成 新触媒開発	2019/3/7
3	日本経済新聞	約 100℃で反応 水素など作る光触媒	2020/2/3
4	鉄鋼新聞	高性能な光触媒開発 温室効果ガスを照射、 化学原料に変換	2020/2/7
5	日刊産業新聞	ロジウム使い CO2 分解 新光触媒材料を開 発	2020/2/10

### 【阪井チーム】

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
1	週刊ダイヤモンド	「役に立つ」の求め過ぎが優れた研究を殺 してしまう	2019/10/21
2	日経バイオテク	京大と白鶴、メタノール細菌の死菌体散布 で酒米の収量増加に成功	2020/12/15
3	日本農業新聞	メタノール細菌 葉面散布で 16%増収	2021/2/1
4	読売新聞	メタノール細菌 酒米育む	2021/2/7

### 【荘司チーム】

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
1	神戸新聞	生体内の酵素 動き解析 佐用の理研、新 薬開発に期待	2017/11/18
2	中日新聞	プラに使う化合物、大腸菌使い製造 名大 が新手法開発	2018/6/5

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
3	大学ジャーナル	名古屋大学がベンゼンをフェノールに変換する細菌を開発	2018/6/11
4	化学工業日誌	フェノールの合成 大腸菌で効率良く	
5	中日新聞	緑膿菌効果的に殺菌	2019/7/23
6	読売新聞	耐性緑膿菌の殺菌法開発 抗菌薬の開発に光	2019/7/25
7	科学新聞	緑膿菌を選択的に殺菌 栄養獲得システムを利用	2019/7/26
8	朝日新聞	薬剤耐性ある緑膿菌 新殺菌法	2019/8/16
9	日本経済新聞	名大、反応性が極めて低い気体分子の化学変換の高効率化に成功	2019/8/26
10	化学工業新聞	簡便な高圧反応装置 ガス状アルカンの水酸化向け HPLC 転用、100 気圧	2019/9/11

#### 【山中チーム】

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
1	日刊工業新聞	メタンガス反応温度 250℃低下 北大がコバルト触媒	2018/8/15
2	化学工業日報	MCH 脱水素 低コストで	2019/11/8
3	TBS テレビ	未来への起源	2019/7/7

#### 【村松チーム】

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
1	日本経済新聞	化学反応 1 回で天然ガス→液体	2019/04/01
2	東北大学材料科学高等研究所 (WPI-AIMR)	ナノ触媒のリサイクル法を開発	2021/09/13

【高橋チーム】

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
1	fabcross for エンジン ア	触媒データを自動取得できる装置を開発 ——自らビッグデータを生成して機械学 習で分析 J A I S T など	2019/12/27
2	This kiji is(ノアドッ ト)【ポータル】	材料ビッグデータを用いた触媒インフォ マティクスで、30年の研究を1カ月で 実証	2020/01/10
3	大学ジャーナルオンラ イン(くらむぼん出版/ タッチポイント)	材料ビッグデータを用いた触媒インフォ マティクスで、30年の研究を1カ月で 実証	2020/01/10
4	livedoor ニュース (LINE)【ポータル】	ビッグデータで触媒化学の開発を飛躍的 に加速 北陸先端大などの研究	2020/01/10
5	BIGLOBE ニュース【ポ ータル】	ビッグデータで触媒化学の開発を飛躍的 に加速 北陸先端大などの研究	2020/01/10
6	This kiji is(ノアドッ ト)【ポータル】	ビッグデータで触媒化学の開発を飛躍的 に加速 北陸先端大などの研究	2020/01/10
7	財経新聞【業界・専 門】	ビッグデータで触媒化学の開発を飛躍的 に加速 北陸先端大などの研究	2020/01/10
8	電波新聞デジタル	北陸先端科技大、北大、熊本大 触媒イ ンフォマティクスを実現	2020/01/14
9	テック・アイ技術情報 研究所 WebNews	触媒設計を加速するデータ分析プラット フォームを開発 ～触媒インフォマティ クスによる触媒開発～	2020/04/21
10	オプトロニクス (オン ライン)	北大ら、触媒インフォマティクス基盤を 開発	2020/04/21
11	日本経済新聞	北大、触媒設計を加速するデータ分析プ ラットフォームを開発	2020/04/21
12	日経 XTECH	北大、AI を活用した「触媒インフォマ ティクス」を推進するデータ分析プラッ トフォーム	2020/04/27
13	日刊ケミカルニュース	北海道大学 AI プラットフォームの開 発を成功、触媒設計を加速	2020/05/08
14	日本経済新聞	北陸先端科学技術大学院大と北大、ハイ	2021/01/27

No	掲載紙名	タイトル	新聞掲載された年月日
		スループット実験と触媒インフォマティクスを駆使しゼロからの触媒設計を実現	
15	日本の研究.com(バイオインパクト)	ハイスループット実験と触媒インフォマティクスが実現する ゼロからの触媒設計	2021/01/27
16	JPubb(レッドクルーズ)	ハイスループット実験と触媒インフォマティクスが実現するゼロからの触媒設計	2021/01/27
17	北國新聞	多分野で適用可能「触媒設計」を実現	2021/01/28
18	オプトロニクス	J A I S Tら、知見に依らない触媒設計法を確立	2021/01/28
19	EurekAlert!	多分野で適用可能「触媒設計」を実現	2021/02/03
20	AlphaGalileo	Thanks to machine learning, the future of catalyst research is now!	2021/02/03
21	日刊工業新聞	触媒の「世界地図」描く	2021/09/23
22	日刊工業新聞	暗黙知を共有	2021/09/24

## 7. 総合所見

### (1) 研究領域のマネジメント

最初に、高難度なメタン転換のための革新的触媒創出にむけた研究について多方面の研究者からプロジェクト提案いただいたことに礼を申し上げたい。採択されたほぼ全ての研究チームにおいて、事前にメタン反応が起こるような触媒を得た上で研究提案したものはなく、一から始めるものがほとんどで、各研究チームにおいて大変リスクの高い研究領域のスタートであった。あるのはオリジナルな触媒研究方法論やソフトな研究マインド、姿勢だけであったが、採択された各チームはメタン反応の特殊性を充分判断し、実に精力的に研究を実施した。従って、領域をマネジメントする側として、各研究者が目標を失って右往左往するような研究を実施することが決して無く、それぞれに特徴のある姿勢の中で、必ずしも先が見える訳でもない物に果敢に挑戦するマインドを維持することに腐心した。それは冒頭に記した重要基本方針にあり、常にこれを念頭に領域マネジメントを実施した。これにはサイトビジットが効果的と考え、かなり多く実施した。一部脱落があったが、多くのチームはゼロから一（ないしは十）を作り出したと判断している。領域アドバイザーに会議等への頻繁な参加と各チームの研究への積極提案はこれに大きく貢献した。加えて、チーム間連携を推進するマネジメントも有効に機能したと見ており、高難度で複雑な研究を実施する上で欠かせないものであった。難度の高い研究が新しい発見の駆動力となった証であり、そのマインドを維持、推進する組織体形成は重要である。

### (2) 研究領域としての戦略目標の達成状況

本研究領域発足時に、研究戦略として、メタン化学の特殊性を深く鑑みつつ、現代の触媒化学技術と新しい科学基盤の進展を協調させ、メタン転換反応触媒の創出を達成する、また逆に、メタン化学達成の目標を駆動力として、新しい触媒化学と技術創出に挑戦する、ことをねらいにした。またこの研究を推進するため各研究チーム間での研究連携をコアに据えた。これにより、多くの研究チームでゼロから一を作り出し、そのいずれもが独自性の高い成果となっている。ここ数年のメタン触媒研究で発表される論文の多くは既知の触媒の改良研究が多い中、本研究領域から生まれ出たメタン転換触媒は先駆けになるものや、従来の性能を明らかに超えるもの、新規な触媒材料によるものなど、本研究領域の研究マインドがいかに発揮された成果となった。また得られた成果は研究連携が効果的に作用して生まれたものもあり、組織だった研究領域の成果である。そのような意味で、本研究領域の目標は第一次レベルで高く達成されたと判断できる。また、触媒創出技術の面で、計算科学とデータ科学（触媒インフォマティクス展開）や高度な分析などの分野で研究推進を強く図ることができた点でも、本研究領域の目標は第一次レベルで高く達成されたと判断できる。しかしながら、一を十、百にする触媒革新は例が少なく、後世まで残る唯一無比の触媒創出をもたらすまでには至っておらず、その意味において目標達成は道半ばである。

### (3) 本研究領域を設定したことの意義と妥当性(研究開始以前や中間評価時点と、終了時点の比較を念頭において)

世界は脱炭素社会を実現する方向へと鍵を切った。容易ならざる道であるが、人類社会のあるべき方向であることに間違いがないので、あらゆる方策が取られることになる。必要とする科学技術は、再生可能エネルギー生産を基盤にして水素と二酸化炭素からの化学物質生産体系を構築するためであり、同時に石油に代わり水素比率が最も高い炭素資源であるメタンを最大限に活用し、従来よりも二酸化炭素排出を少なくエネルギー生産でき、また少ないエネルギー消費で化学物質を生産するためである。このメタンと二酸化炭素は炭素1個の化合物という共通性の中にありながら、全く異なる化学転換技術を必要とする。二酸化炭素利用の触媒技術はある程度成立している。もちろん更なる触媒性能の向上は求められるが、鍵は再生可能エネルギーを作り、水素を大量に作るところにある。一方、メタン利用技術では革新的な触媒技術の登場が依然求められる状況である。メタンが将来の脱炭素社会構築の架け橋となる可能性を秘めているため、メタンを基軸にした技術展開が進むことに大きな期待が依然あるので、その意味で本研究領域に大きな価値と貢献があったとできるが、今後の変化しやすい脱炭素の潮流のなかで、正しい研究領域設定は難しい。

二酸化炭素でもメタンでも、これらの転換プロセスには触媒は不可欠であるが、大事なのはその開発速度である。残念ながら、触媒開発の速度は年々遅くなっている。それは、時代の要請で、達成しようとする反応が複雑であったり、極度に高い触媒性能が要求されたり、高いプロセス性能、エネルギー効率性能であったり、そして今回のメタン変換のように反応自体の難度が高いものが対象になったりしているためである。従って、その分、触媒には高い機能が要求され、ひいては触媒は複雑な機能物質とならざるを得ず、それを生み出すのは容易でなく、時間がかかってしまう。ひるまずこのような研究課題を着実に実行すれば良いのだが、やはり避けてしまうのが現実なのかもしれない。その意味で本研究領域はあえてこの問題のまっただ中に踏み込み、事をなし得ようとした。挑戦する雰囲気を作ったと言える。これはまさに時代の要請に即したものであり、本研究領域は一里塚であった。

### (4) 科学技術イノベーション創出に向けた、今後への期待、展望、課題

本研究領域の主要課題である、高度計測と計算科学とデータ科学との連携、およびマテリアルズインフォマティクスと触媒物質化学とが連動した触媒インフォマティクスは、難度の高い触媒創出の革新的な方法論として必ず発展するであろう。まだまだ発展途上にあり、最終的な方法論の姿を早く見てみたいものであるが、時間はまだかかるであろう。それを待たずして、今多くの企業で導入が進み、さまざまな局面で進展が見られる。すでにこの方面でイノベーションが進んでいると見た方が良くであろう。一方、オペランド分析のように、これまで見えなかった反応のダイナミクスの中で複雑物質にして高機能を示す触媒の真の姿を与えるようになりつつあり、複雑機能物質の最先端に行く触媒に革新をもたらす上で

必須のものとなろう。オペランドの考えは他の物質科学では必ずしも一般的ではなく、このような方法論の発展は間違いなく多くの分野にも新次元の効果をもたらし、多方面で科学技術イノベーションをもたらす事になる。

#### (5) 所感、その他

本研究領域の募集から採択、研究実施の過程の中で、日本の触媒化学研究の幅広い力強さと対応力を感じさせるとともに、これまで培った研究知識を新次元にまで発展させる力の弱さを少なからず、感じさせた。例えば全く触媒として対象とされて来なかった物質を検討するような取り組みが全面的に実施されることはなかった。幸い研究連携の中で対象とすることができたが、限定的であった。このような状況では、これまでの研究の惰性の力では同じレベルの研究には対応できても、メタン変換反応など数多ある難題に直面すると太刀打ちできず、立ちすくむことになるのではないかと考えてしまうが、これは先入観がなしている現象である。実際には、本研究領域で多くの研究者が一同に会し、メタンと触媒を共通語に意見を述べ合う中で、「やってみよう」と言う気になり、「できるじゃないか」に変わっていった。これは驚きであった。個人力ではできないこと、またやろうとしないことができたのは、今回の本研究領域「革新的触媒」が潜在的に持つ強い推進力のなせる技であろう。ただ、やり切るまでには、さらに一層の強い取り組みと、執念が必要であり、今後の継続的な研究を各研究者に望みたい。

本研究領域発足時には、総括は「この研究領域からメタン社会が始まった、と言えるようにしたい。」と表明した。この点は、そのように言えるようには残念ながらならなかった。ただ将来の起点づくりには貢献したと思われる。一方、同時に「この研究領域から新しい型の触媒研究が始まった、と言えるようにしたい。」とも表明した。この点は、完全ではないがしっかり貢献できたと思われる。

以上