

研究領域「多様な天然炭素資源の活用を資する革新的触媒と創出技術」 事後評価（課題評価）結果

1. 研究領域の概要

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に向けて、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は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推進します。

埋蔵量が豊富な天然ガス等に含まれるメタンをはじめとするアルカンガス資源からこれまでにない技術で化成品やエネルギーへの変換が容易にできるようになれば、現代社会が直面する石油依存という問題からの脱却や二酸化炭素排出低減も可能になります。しかし、メタンなどのアルカンガス資源を直接化成品などに変換するプロセスは難度が高く、メタンの改質によって生成する合成ガス(CO+H₂)を経由するなどの間接的なプロセスを利用しているのが現状です。

この高難度な課題を克服することが本研究領域の主眼であり、高度な触媒技術を生み出す新しい取り組みを推進します。そのためには、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非連続的に飛躍させることが重要です。

本研究領域では、特に難度が高いメタンを反応基質とする研究を基軸に据えます。エタンやプロパン等の低級アルカンを反応基質とする反応については、既知の手法に比較して圧倒的に高活性・高選択性を目指す革新的な触媒研究を対象とします。

将来的に、化学産業における天然ガス等の資源の新たな活用を切り開き、ひいては新たな産業基盤の確立につながる、本格的にして世界をリードできる触媒研究を推進します。

2. 事後評価の概要

2-1. 評価の目的、方法、評価項目及び基準

戦略的創造研究推進事業・CRESTにおける事後評価の目的、方法、評価項目及び基準に沿って実施した。

2-2. 評価対象研究代表者及び研究課題

2017年度採択研究課題（1年追加支援課題）

(1) 高橋 啓介（北海道大学大学院理学研究院 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

(2) 山下 誠（名古屋大学大学院工学研究科 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

2-3. 事後評価会の実施時期

2023年3月 研究者からの研究報告書に基づき研究総括による事後評価（1年追加支援課題）

2-4. 評価者

研究総括

上田 渉 神奈川大学 化学生命学部応用化学科 教授

領域アドバイザー

該当無し

外部評価者

該当無し

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 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

2. 研究代表者名及び主たる共同研究者名（研究機関名・職名は研究参加期間終了時点）

研究代表者

高橋 啓介（北海道大学大学院理学研究院 教授）

主たる共同研究者

宇野 毅明（情報・システム研究機構国立情報学研究所 教授）

大山 順也（熊本大学大学院先端科学研究部 准教授）

谷池 俊明（北陸先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科 教授）

西村 俊（北陸先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科 准教授）

3. 事後評価結果

○評点（2022年度事後評価時）：

A+ 非常に優れている

○総合評価コメント：

（以下、2022年度課題事後評価時のコメント）

本研究課題は、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を推進し、旧然としたこれまでの触媒開発方法論から脱却し、従来の枠を超えた新しい方法で触媒開発結果を与える方法論の確立を目指している。論文に報告されたメタン酸化カップリング触媒の性能データと反応条件データをデータベース化し、データ科学的手法から評価に必要な要素を明確にし、実際に新しい触媒構成元素を提示した。同時に膨大なデータを自前で収集するハイスループット装置を組み上げ、過去30年で蓄積されたデータ数を一桁上回る12,000点ものデータを数日で取得することにも成功した。触媒インフォマティクスとして必要な実験条件が統制された形でデータ取得を早期に実施し、また同時に触媒記述子を設計するなどして、計算・データ科学からの触媒設計手法をより精緻なものにし、実際に有効な新しい触媒をいくつも見出すに至っている。また、オントロジーを導入して触媒ビッグデータ内の関係性をネットワークとして記述すること、あるいは触媒の新たな記述方法の提案、計測データのインフォマティクス化などの方法論を新たに開発し、これらによっても数々の新しい触媒を見出すに至っている。一方、外部活動についても実施し、収集したデータが可視化、機械学習、画像解析できる触媒プラットフォーム「CADS: Catalysts Acquisition by Data Science」の開発に成功し、Web上で公開している。国内外の大学、企業などで幅広く利用され、また企業との連携で社会実装も進んでいる。現在では世界初の触媒実験データセンターとしても機能している。

以上のように、触媒作用は複雑現象でありながらも、本チームは触媒インフォマティクスが本来的に持つ不確実性をもろともせず果敢に挑戦しており、またさらに進化すべく、触媒を設計する方法論や種々のインフォマティクスも取り入れながら活動を活発に実施し、多くの成果を上げたことは高く評価する。これらの研究で触媒インフォマティクスという革新領域に成功裡に踏み込めたことになり、時機を得た研究であった。現在、触媒特有の記述子に展開しつつあり、メタンからメタノールへの触媒インフォマティクス展開も展開中であり、今後を注目したい。

（2024年3月追記）

触媒インフォマティクスによる触媒探索法の高度化を実施した。実験結果を学習データに加えてベイズ最適化/機械学習予測という方法により機械学習を鍛錬することに成功し、また計測データの触媒記述子化も実施して分析と収率の相関を機械学習によって特定し、触媒の表面状態に従った活性触媒創出に成功した。触媒インフォマティクス手法「MonteCat」法も開発した。これによりこれまで選定が困難

であった記述子を莫大な触媒特長量から効率的に選定でき、特に機械学習の線形回帰が適用できる触媒記述子を探索できることに成功した。これは機械学習による外挿の触媒予測が可能になった世界初の成果である。さらに証拠理論や結晶データベースを取り込んだ方法論の検証が進んだ。以上により性能に優れた新たなメタン酸化触媒を見出している。またプラットフォーム「CADS」ではデータ科学による画像解析技術とベイズ最適化のグラフィックユーザーインターフェイスを実装し、さらなるユーザーの拡大を図った。以上のように触媒インフォマティクス方法論のさらなる発展を導いた。今後より高次の科学的展開能を備えた触媒インフォマティクス方法論へと発展するものと期待される。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 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

2. 研究代表者名及び主たる共同研究者名（研究機関名・職名は研究参加期間終了時点）

研究代表者

山下 誠 （名古屋大学大学院工学研究科 教授）

主たる共同研究者

山口 和也 （東京大学大学院工学系研究科 教授）

菅原 武 （大阪大学大学院基礎工学研究科 助教）

3. 事後評価結果

○評点（2022年度事後評価時）：

B やや劣っている

○総合評価コメント：

（以下、2022年度課題事後評価時のコメント）

本研究課題は、メタンが超臨界状態にあって、反応基質でもあり溶媒でもある特殊場を形成し、そこで均一系ないしは不均一系触媒を存在させて反応を行い、メタンの化学変換を図るものである。超臨界メタンの条件は、基質の高濃度化による反応速度増加、生成物分散による反応の高選択性化が効果的に図れるようになるため、従来プロセスでは達成できなかった低温運転、高選択性のメタン転化プロセス（メタンから C2 以上のアルカンを合成、メタンからメタノールの合成）の達成が可能となることが狙いである。

バッチ式高圧反応システムでの触媒反応検討では、各種の新規に設計したピンサー配位子の錯体触媒によるメタンの活性化とメタン脱水素多量化反応、ヒドロキシイミド誘導体やその MOF 体を触媒とするメタンやアルカンの酸化反応、錯体触媒によるメタンのポリル化反応を広範に検討し、メタン超臨界条件の触媒反応への効果を明確化することに努めた。一方、フロー式高圧反応システムでの触媒反応検討では、新たな高圧反応装置を構築し、Cu や Fe の元素を含む多数のポリオキシメタレート種を前駆体とする担持型触媒をさまざまに調製し、メタン酸化によるメタノール合成を展開した。前者では超臨界状態の一定の効果は認められたが、明快な特徴として明示するまでには至らなかった。後者では、メタノール生成にかなり強い正の効果認め、低温でのメタン選択酸化が可能になるなど、発展の可能性が高い成果があった。

以上のことが超臨界効果に基づくものかどうかなど、残された課題は多いが、一定の成果を上げたとして評価する。

（2024年3月追記）

課題であったメタン超臨界条件での固体触媒作用の検証が進んだ。従来の高温メタン酸化カップリング反応とは異なり、より低温でかつ超臨界条件で発生するメチルラジカル種が触媒表面場で二量化し、C2化合物を与える新しい反応機序が見出された。また、メタン超臨界状態の可視化や分光分析が可能でこれまででない高圧装置が完成した。メタンのみならず広く超高压状態分析に利用されると期待される。

同時に、常圧下でアルカンの安定なC-H結合切断を可能にする新しい触媒の開発が進んだ。錯体触媒系では独創的なリガンドデザインが進み、アルカンなどの炭素-炭素飽和結合を不飽和化する新規な触媒が創出された。これは従来の触媒能を大きく凌駕した。また、固体触媒系では無機のヘテロポリ酸塩の構造デザインが広く展開された。これを基材にして固体触媒構築することにより、酸素酸化条件でのメタンからホルムアルデヒドやメタノールの合成を可能にした。優れた性能の触媒へと進化することが期待される。

以上のように多くの点で初期目標を達成するとともに、メタン反応の次なる展開を可能にする礎を築いた研究として評価する。