

戦略的創造研究推進事業  
—チーム型研究(CREST)—

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」

研究領域中間評価用資料

研究総括：上田 渉

2020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 .....	4
(3) 研究総括 .....	5
(4) 採択研究課題・研究費.....	6
2. 研究総括のねらい.....	8
3. 研究課題の選考について.....	10
4. 領域アドバイザーについて.....	15
5. 研究領域のマネジメントについて.....	17
6. 研究領域としての戦略目標の達成に向けた状況について.....	23
7. 総合所見 .....	33

## 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」

#### ①概要

世界では、石油に依存する化学産業が急激に変容しつつある。米国では、シェール革命を受け、安価な天然ガス原料のエタンを使用して製造するエチレンが強い競争力を持ち始めている。中国でも、石炭を用いたメタノールの合成等が行われている。一方で、天然ガスに豊富に存在するメタンや低級アルカンを効率良く活性化する画期的な触媒の創製は非常に難度が高く、実現できれば、国際的にもインパクトが非常に高い。特に、二酸化炭素排出(エネルギー投入)が少ない製造技術に期待が高まっており、極めて高い技術の醸成が急務である。

そのため、本戦略目標では、日本が誇る触媒研究の高い競争力を活かして、メタン( $\text{CH}_4$ )や、低級アルカン( $\text{C}_n\text{H}_x:n = 2, 3$ )等の多様な資源を、化成品原料やエネルギーとして活用するための革新的触媒を創製する。最先端の物質合成・計測・計算技術とデータ科学を利活用した物質探索を共通基盤として、原理解明と触媒創製を戦略的に推進し、多様な天然炭素資源を高効率に活用する社会を切り拓く。

近年進化している、計算・計測技術を駆使することで画期的な触媒を設計及び創製することができれば、新たな触媒研究の基盤を確立することができるだけでなく、ナノテクノロジー・材料研究における新たな方法論を切り拓くことも期待でき、我が国のさらなる競争力強化につながる。

#### ②達成目標

本戦略目標では、天然ガスの大半を占めるメタン( $\text{CH}_4$ )や、低級アルカン( $\text{C}_n\text{H}_x:n = 2, 3$ )等の天然炭素資源を、化成品原料やエネルギー体へと変換するための革新的触媒を創製することを目的とする。具体的には、以下の達成を目指す。

- ①メタンを化成品原料やエネルギーへ変換する C1 化学を実現する触媒の創製
- ②低級アルカンを化成品原料やエネルギーへ高効率に変換する触媒の創製
- ③物質創製、計測・解析、理論計算、実験・計算データを利活用した物質探索の連携による、触媒反応の指導原理解明へ向けた共通基盤の確立

#### ③研究推進の際に見据えるべき将来の社会像

達成目標に記載した事項の達成を通じ、以下に挙げるような社会の実現に貢献する。

- 天然ガスに豊富に含まれるメタンや低級アルカン等、石油以外の多様な炭素資源を

化成品や燃料に変換して利活用することが可能となり、我が国の根幹を支える基幹産業が形成されている社会。

○石油に依存しない多様な原料・エネルギー源活用型社会を構築することで資源リスクを減少するとともに、将来的にメタンハイドレードの利用が実現した場合、資源立国への道が拓けている社会。

#### ④具体的な研究例

##### (i) メタンを化成品原料やエネルギーへ変換する C1 化学を実現する触媒の創製

メタンを反応基質とし、メタノール等の高付加価値化成品への直接合成反応を実現する高活性・高選択性反応触媒を開発する。

##### (ii) 低級アルカンを化成品原料やエネルギーへ高効率に変換する触媒の創製

エタン/プロパン等を反応基質とし、エチレングリコールや酢酸、プロパノールやアクリル酸等の高付加価値化成品への反応を実現する革新的な高活性・高選択性反応触媒を開発する。

##### (iii) 物質創製、計測・解析、理論計算、実験・計算データを利活用した物質探索の連携による、触媒反応の指導原理解明へ向けた共通基盤の構築

触媒反応の実作動条件・その場での動的表面計測を実現する。大規模理論計算による触媒反応のマルチスケール、マルチフィジックス解析を実現する。マテリアルズインフォマティクスの活用による実験・計算データを利活用した物質探索を実現する。

#### ⑤国内外の研究動向

##### (国内動向)

我が国の触媒研究は国外に対して高い競争力を有しており、バイオマスからの可溶化・糖変換、化成品触媒、太陽光を使った水分解・水素生成、二酸化炭素を燃料・原料へ変換する人工光合成等については、研究開発が鋭意進められている。一方で、メタン・低級アルカンを化成品原料やエネルギーとして利活用する研究は未踏の領域である。最近になり、従来の触媒研究とは異なる発想で常温アンモニア合成を可能としたエレクトライド触媒の研究(細野ら、2012)など、メタン・低級アルカンからの原料・エネルギー変換に資する可能性がある研究が活発化している。これらの周辺研究領域の知見や、計測・計算・データ科学の急速な進展を取り込み、メタン・低級アルカンからの原料・エネルギー変換へ取り組む体制を早期に構築する必要がある。

##### (国外動向)

シェール革命を受けて、メタンや低級アルカンを利活用する技術開発は各国の産業競争力へ直接的な影響を及ぼすこととなったため、欧米を始めとする各国で研究開発が進められている。

例えば、露国では、亜酸化窒素を用いてメタン⇒メタノールの選択合成で 160℃において最大 96%を達成したとの報告がなされている。また、米国では、米エネルギー省における挑戦的な先端研究へのファンディングプログラム・ARPA-E において、2013 年からメタン資化性微生物を使って、メタンを液体燃料に変換する小規模プロセスを開発するプロジェクトの支援が行われている。加えて、ベンチャー企業が、微生物を利用したメタンからの化成品製造へ取り組んでいる。

## ⑥検討の経緯

「戦略的な基礎研究の在り方に関する検討会 報告書」(平成 26 年 6 月 27 日)に基づき、以下の通り検討を行った。

(サイエンスマップ及び科研費 DB を用いた国内外の研究動向に関する分析資料の作成)

「サイエンスマップ 2012&2010」(平成 26 年 7 月 31 日科学技術・学術政策研究所)及び科学研究費助成事業データベースにおける情報を用いて、国内外の研究動向に関する分析資料を作成した。

(分析資料を用いた専門家へのアンケートの実施及び注目すべき研究動向の作成)

「科学技術振興機構研究開発戦略センター」や「科学技術・学術政策研究所科学技術動向研究センターの専門家ネットワークに参画している専門家」に対し、作成した分析資料を用いて今後注目すべき研究動向に関するアンケートを実施した。その後、アンケートの結果の分析等を行い、注目すべき研究動向として「エネルギー高効率変換に向けた革新的触媒の創製」を特定した。

(ワークショップの開催及び戦略目標の作成)

注目すべき研究動向「エネルギー高効率変換に向けた革新的触媒の創製」に関係する産学の有識者が一堂に会するワークショップを開催し、特に注目すべき国内外の動向、研究や技術開発の進展が社会的・経済的に与え得るインパクトやその結果実現し得る将来の社会像、研究期間中に達成すべき目標などについて議論を行い、ワークショップにおける議論等を踏まえ、戦略目標を作成した。

## ⑦閣議決定文書等における関係記載

科学技術イノベーション総合戦略 2014(平成 26 年 6 月 24 日閣議決定)第 2 章第 1 節 I. 3. (3)<1>

シェールガス、非在来型原油や二酸化炭素等多様な原料から効率的にエネルギー・化学品の生産を図る革新的触媒技術等及び微生物やバイオマスによるエネルギー資源の生産技術を研究開発する

## ⑧その他

○触媒がカバーする研究領域は幅が広く、プロジェクトごとにターゲットとしている領域が異なる。大型プロジェクトの主な対象は以下の通りである。

- ・平成 24 年度戦略目標「環境、エネルギー、創薬等の課題対応に向けた触媒による先導的な物質変換技術の創出」の下で行われている研究では主に二酸化炭素を変換する化成品触媒や太陽光を使った水分解・水素生成を対象としている。

- ・科学技術振興機構の先端的低炭素化技術開発(ALCA)ではバイオマスからの可溶化・糖変換や、化成品触媒を対象としている。

- ・経済産業省では人工光合成化学プロセス技術研究組合(ARPCHEM)において、太陽光と光触媒を使った水分解反応により生成した水素を用いて、二酸化炭素を原料へ変換する人工光合成へ取り組んでいる。

- ・平成 24 年度戦略目標「環境・エネルギー材料や電子材料、健康・医療用材料に革新をもたらす分子の自在設計『分子技術』の構築」、平成 25 年度戦略目標「選択的物質貯蔵・輸送・分離・変換等を実現する物質中の微細な空間空隙構造制御技術による新機能材料の創製」の下で行われている一部の研究では、バイオマスからの可溶化・糖変換や、化成品触媒を対象としている。

○このように、本戦略目標で対象とするメタンや低級アルカンからの化成品原料やエネルギーへの変換は重要な領域であるにも関わらず、現在までに対象としているプロジェクトがない未踏領域であり、本戦略目標の下で行われる研究に関して、他機関とも連携した体制を構築していくことが期待される。

## (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)

### 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する。

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る。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+H<sub>2</sub>)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ある。

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する。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ある。

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る。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する。

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ような本格的にして世界をリードできる触媒研究を推進する。

### (3) 研究総括

上田 渉 (神奈川県立大学工学部物質生命化学科 教授)



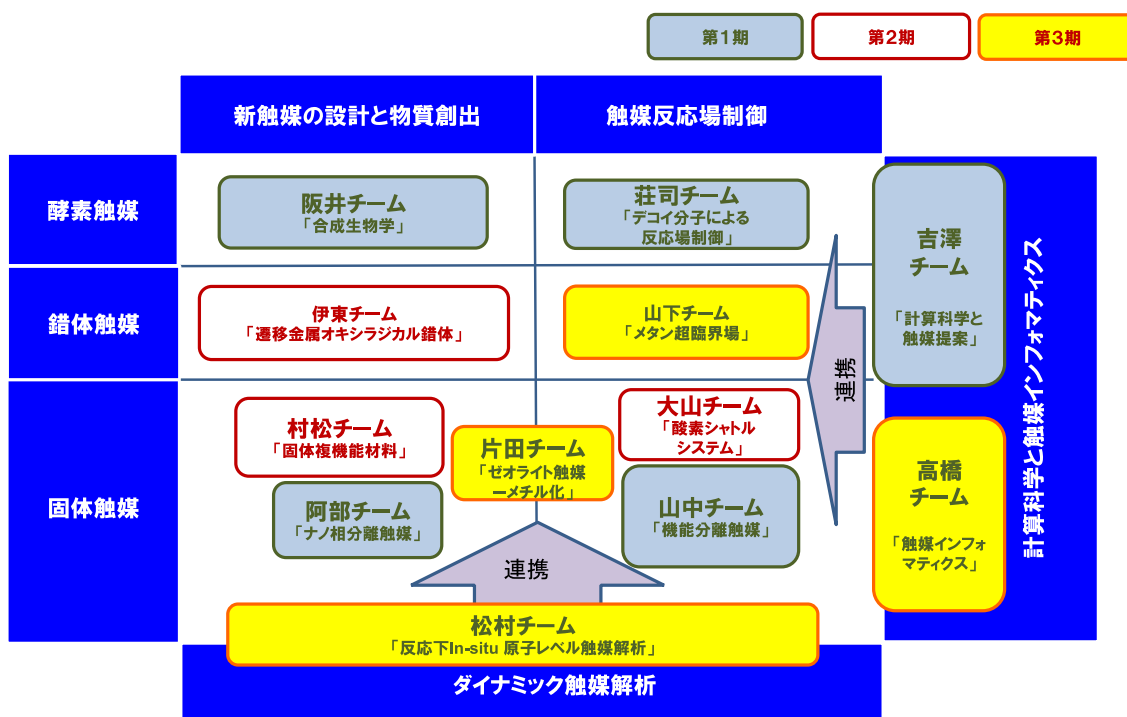
## (4) 採択研究課題・研究費

(百万円)

採択年度	研究代表者	所属・役職 上段：中間評価時 下段：採択時	研究課題	研究費 (直接経費)*
2015年度	阿部英樹	物質・材料研究機構・主席研究員	高効率メタン転換へのナノ相分離触媒の創成	260
	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	285
	荘司長三	名古屋大学・教授 同大学・准教授	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	294
	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	275
	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	166
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	305
	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	267
	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	296
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	275
	高橋啓介	北海道大学・准教授 物質・材料研究機構・研究員	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	330
	松村晶	九州大学・教授	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	308
	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	211
			総研究費	3272

\*研究費：2019年度上期までの実績額に2019年度下期以降の計画額を加算した金額

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。

## 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いが、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) 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チ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。

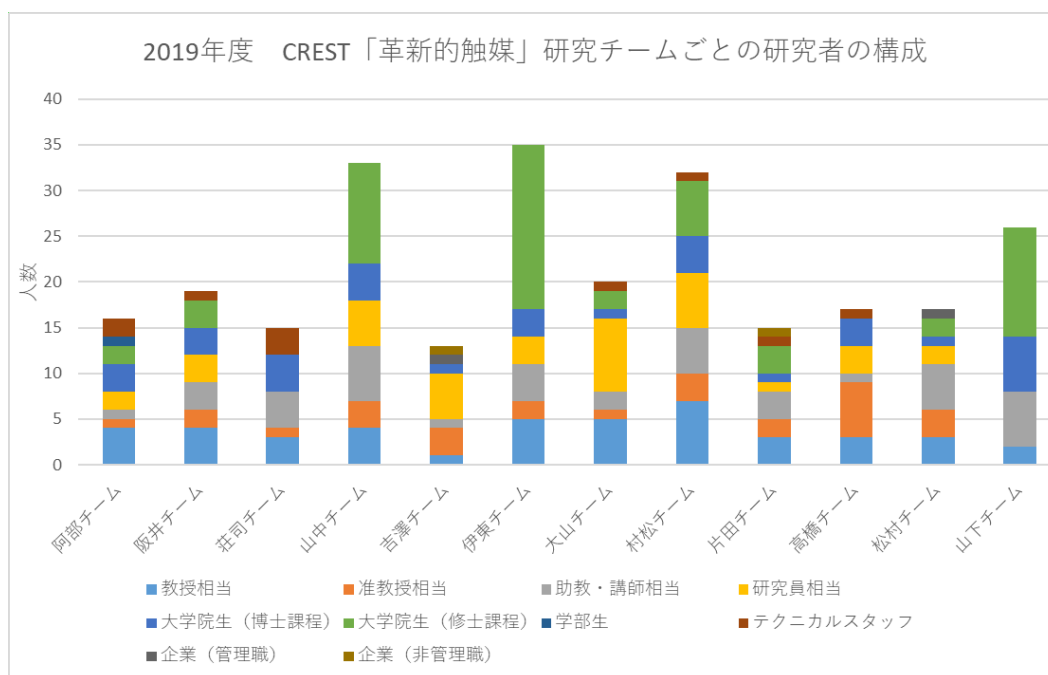
採択者には面接後の面談時等に、本研究領域の運営方針として打ち立てた、メタン利用革新的触媒創出を導く戦略的かつ挑戦的な研究を推進するための以下の重要基本方針を提示し、研究総括としての意向を伝えた。

- 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。

各研究課題の研究者構成は以下の図の通りである。



#### 4. 領域アドバイザーについて

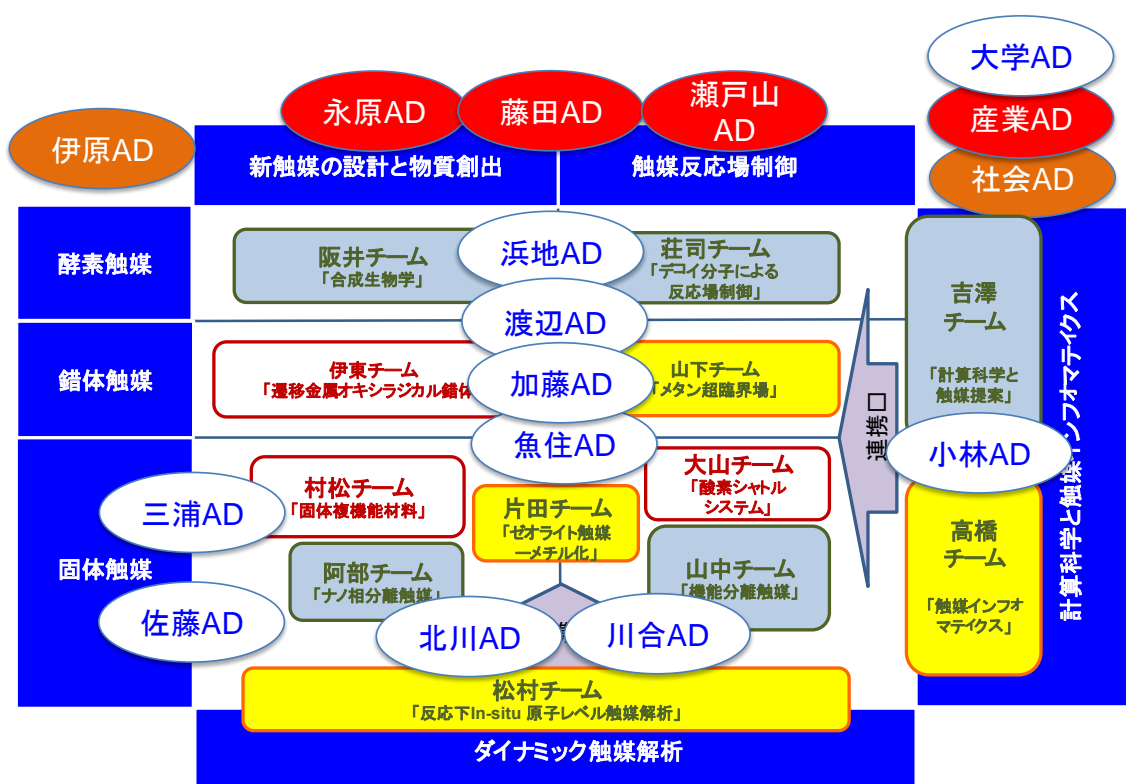
領域アドバイザー名	現在の所属	役職	任期
伊原 賢	石油天然ガス・金属 鉱物資源機構 技術部	特命調査役	2015年4月～ 2023年3月
魚住 泰広	自然科学研究機構 分 子科学研究所	教授	
加藤 昌子	北海道大学 大学院理 学研究院	教授	
川合 眞紀	自然科学研究機構 分 子科学研究所	所長	
北川 宏	京都大学 大学院理学 研究科／京都大学	教授／理事補 (研究担当)	
小林 久芳	京都工芸繊維大学	名誉教授	
佐藤 智司	千葉大学 大学院工学 研究院	教授	
瀬戸山 亨	三菱ケミカル(株)／ 横浜研究所	執行役員／瀬戸 山研究室長	
永原 肇	旭化成(株)	顧問	
浜地 格	京都大学 大学院工学 研究科	教授	
藤田 照典	三井化学(株)	シニア・リサー チフェロー／特 別研究室長	2015年4月～ 2023年3月
三浦 弘	埼玉大学	名誉教授	
渡辺 芳人	名古屋大学	審議役	
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。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をお願いした。

下図は、各研究チームの構図の中に、各アドバイザーが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ている。



## 5. 研究領域のマネジメントについて

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、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、コメントや要望を交換し、組織の編成の変更や組織の充実、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ている。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ることを行なっている。

前者については、研究チームの発足から速やかに研究代表者のみならず研究チームの主たる共同研究者を含めたサイトビジットを実施し、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ている。そのためサイトビジット(後述)の数はかなり多い。各チームの組織についても発足時に研究者の追加を設定したり、途中から補充する対策を実施したり、さきがけの研究者からの参画も実施した。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関与し、実施することになっている。

一方後者については、バーチャルネットワーク型研究所内に[計算科学連携][オペランド解析連携][ゼオライト連携]を編成し、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るようにした。現在広がりを見せつつあり、まさにネットワーク型の活動が成立するため、これらからも研究総括に多くの情報が集約される構図になって来ている。最近では[計算科学連携]から発展した形で「計算予測実証チャレンジ」プログラムをスタートし、各研究チームに参画する若手研究者のメタン研究への思いを実現する場を設けた(後述)。

他にも、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。以下にそれらについて具体的に紹介する。

### (1) 報告会、会議等

#### 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

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。

合計 26件

阿部 T(H28、H29、H31)、阪井 T(H28、H30、R1)、荘司 T(H28、H30)、山中 T(H28、H29)、吉澤 T(H28)、伊東 T(H29、H30)、大山 T(H29、H30、H31)、村松 T(H29、H30)、片田 T(H30、

- H30)、高橋 T(H30、R1、R1)、松村 T(H30、R1)、山下 T(H30)
- (ii) 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 7 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 15 件

## ②領域会議

領域会議の実績は以下の通り。現在までに、5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。

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

## 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 8 件(1 期 5 件、2 期 3 件)

当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。

## (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

### ①合同チーム会議

合計 3 件(計算・計測、計算・インフォマ、実験・計測)

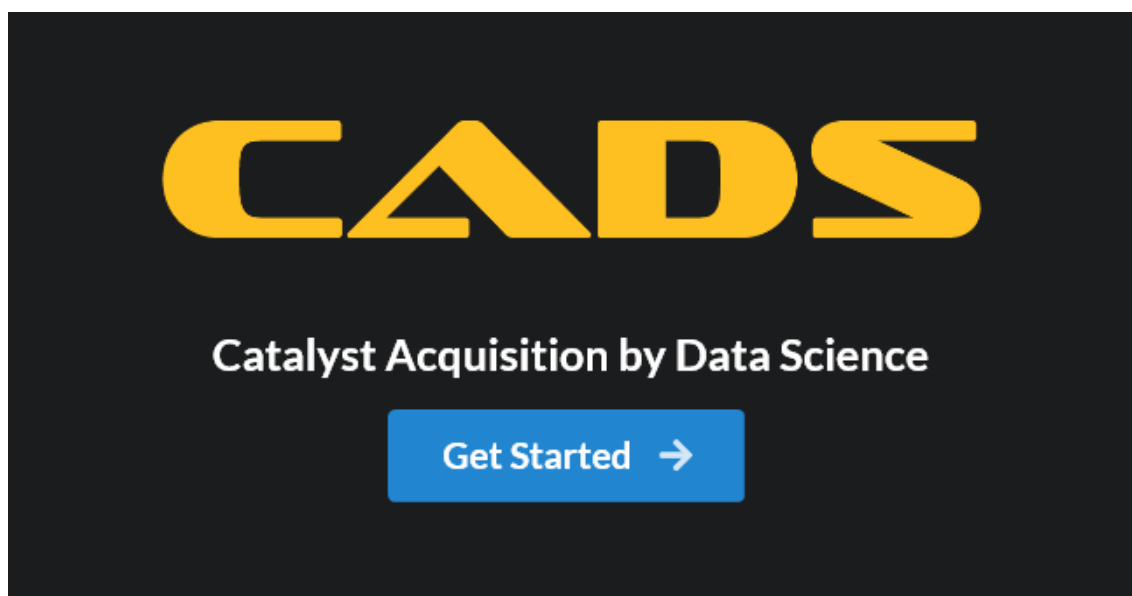
領域独自の取組として、採択終了後の2017年度以降、チーム型ネットワーク研究所として研究課題間の連携を推進するため、適時合同チーム会議等を推奨し、研究総括として参加している。合同会議では国内の他研究機関の招待講演等も設け、領域内外の連携交流も図っている。

## ②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」

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を設立した。基盤機能である「データベース管理・データ可視化・機械学習・ユーザー管理」の開発も完了し、実験的にプラットフォームを公開している。各研究チームと共有し、活用を進めながら、発展させる段取りとなっている。

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



## ③全体チーム会議

合計 3 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

## ④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。

### (3) 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」6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、当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させることが期待できる。

(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年度に増額した。

(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、当研究課題は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(4)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。）

#### (4) その他マネジメントに関する特記事項(人材育成等)

本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な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、取組の流れを以下説明する。

##### 1. 計算予測実証チャレンジについて

CREST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、インフォマの領域内連携を推奨する取組みを進めている。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、AD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)

以下3つから選択。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1
2. 研究テーマ2
3. 研究テーマ3

###### 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がされる。



#### 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 CREST 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

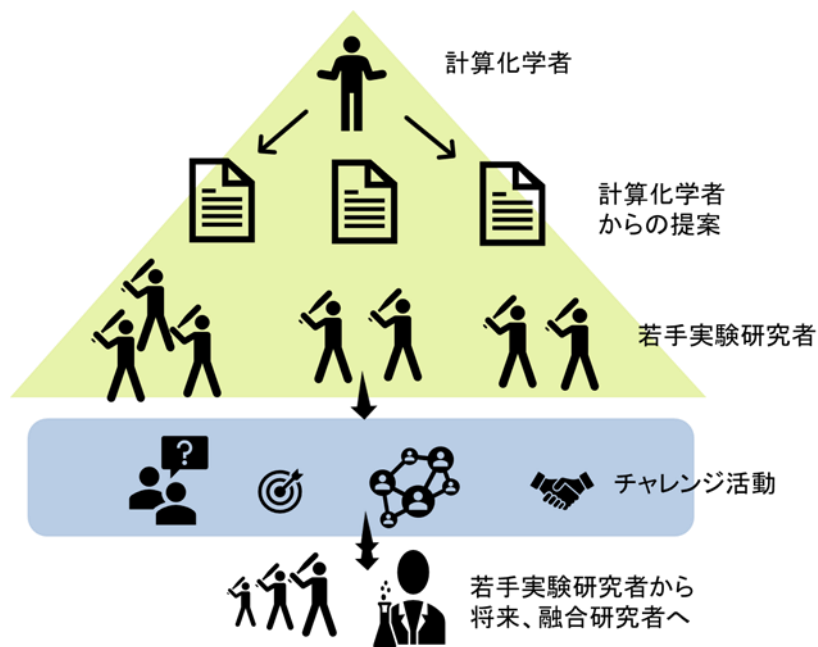
6 月 30 日 キックオフ(九大)

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。



## 6. 研究領域としての戦略目標の達成に向けた状況について

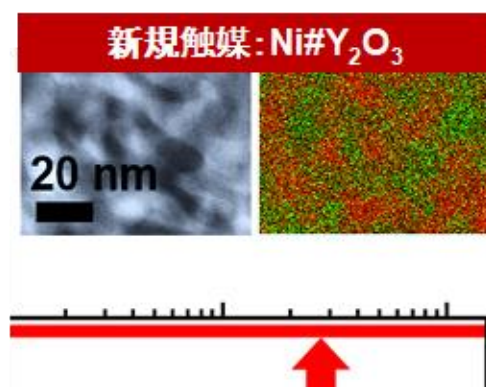
### (1) 研究総括のねらいに対する各チームの研究の状況

#### ①2015 年度採択課題

##### ・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

本研究課題は、反応性気体中での熱処理により多元元素固体がナノ相分離する現象を応用し、メタン転換する新規の高機能触媒材料の創成を目指すものである。これまでの検討で、根留触媒 (Rooted Catalysts) と新たに名付けられたニッケル金属と酸化イットリウムの新種材料が絡み合ったナノコンポジット型の新概念触媒の創出に成功している (下図)。この触媒は、メタンと二酸化炭素とのドライリフォーミング反応に対して低温活性を示し、長時間 (1000 時間) 炭素析出を抑制できるなど、メタン活性化の触媒として基本的に要求される性能を有する。

この成果を受けて、新たに反応工学の研究者を参画させ、金属構造体に仕立てた触媒にして反応を始め、工業的な視点での応用可能性の検証に入った。また同時に、この前例のない根留触媒の持つ本質を明らかにするため、局所構造と炭素析出現象との関連を触媒反応場での電子顕微鏡観察をさきがけ研究領域「革新的触媒」の研究者と協同で開始している。



本研究課題は上述の熱駆動によるドライリフォーミングと並行して、ドライリフォーミング反応を光駆動で行う光触媒の研究も実施し、すでに反応を速やかに起こす光固体触媒を新たに見いだしている。この世界初の固体触媒の創出は、ナノ相分離の発想を起点としており、チーム内連携の成果として評価する。興味深い点は、熱駆動と光駆動の触媒反応の間での反応機構は大きく異なることが推定されることである。今後より詳しく相関性などを明らかにすることで、革新的な触媒開発に繋がることを期待している。

##### ・阪井チーム：合成生物学によるメタン酸化触媒の創製

本研究課題は、メタン酸化によるメタノール生成能を示す全く新しい生体触媒 (superMOB) を合成生物学により創出する高難度な研究に取り組んでいる。その第一ステップとして、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、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。次のステップでは、MOB 最小触媒領域に新規なリンカー配列を挿入し、

その触媒部位周辺の構造が異なる変異体を取得した。変異体を触媒としてメタンと反応させ、メタノールセンサー酵母宿主を用いてメタノールの検出を進めた結果、従来のメタン酸化菌とは異なる異宿主においてもメタン酸化活性が発現することを見出した。自然界にない一次配列をもつ superMOB プロトタイプの初めての登場である。

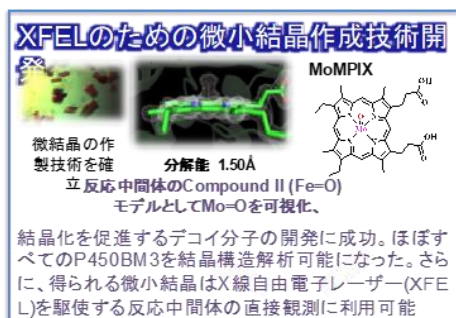
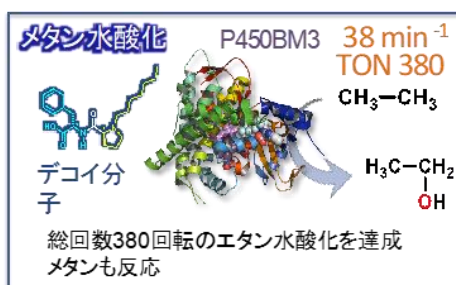
最終目標である superMOB 取得にほぼ成功したと言える。また、この研究で実施された方法論は世界で初めての例が含まれ、その価値は大きいと評価する。現在は構築した手法により、高活性触媒の開発や、細胞触媒創出をさらに推し進める段階にある。また、チーム内で同時に進行しているメタノールからバイオ燃料合成する細菌触媒系との一貫型な組み合わせも視野に入ったので、今後社会実装的な観点での展開も期待している。

・荳司チーム：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

本研究課題は、生体触媒チトクロム P450BM3 にデコイ (擬似) 分子を作用させ、従来低分子では生成されない酸素活性種を生成するよう、触媒を誤動作させることで、メタンを直接的にメタノールへ変換する触媒の創成を目指している。すでにプロパンやエタンなどの小分子を水酸化する高活性なデコイシステムを創出しており、位置・立体選択性のデコイ分子、細胞膜透過型デコイ分子等を構築した。さらに、強い C-H 結合を酸化的に活性化し、含酸素化を達成するという世界で類例を見ない研究に取り組んでいる。最近、大腸菌内の P450BM3 にもデコイ分子が適用可能であることを見だし、ベンゼンの直接酸化を実現した。菌体内で反応できれば、高価な NADPH などを連続添加する必要がなくなることから、新しい概念のバイオリクターとみなされ、メタンへの応用展開も期待できる。

本丸であるメタンの水酸化によるメタノール合成では、現状では加圧条件が不可欠との判断より、新しく簡便な高圧反応装置を独自に開発した。メタン酸化達成直前の段階である。開発した高圧反応装置は他の研究課題においても有効的に利用され、領域内の研究推進に大きく貢献

したと評価する。デコイ分子の作用解明では、デコイ分子を含む触媒の微結晶を作ること成功し、またメタンや酸素分子が作用する反応場

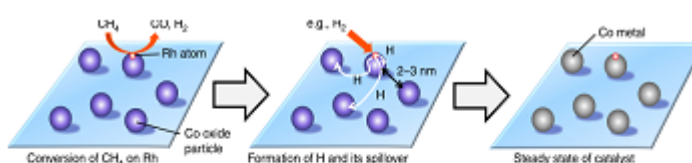


の動的結晶解析する方法も新たに開発している。原理解明を推し進めるための自由電子レーザーX線による構造解析法も確立できたので、本質に迫る段階にきている。

#### ・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

本研究課題では、反応場分離触媒を主題に、様々な特徴を持ったユニークな触媒創出を展開している。理論解析、反応場 in-situ 分析、ゼオライト反応場デザイン等の専門家がチーム内で連携し、反応機構の解明や触媒反応の低温化、触媒安定化を進めるなど、先進的な方法論で触媒創出を進めている。実際これまでの検討で、In 系触媒と NiP 触媒により無酸素下高活性なメタンカップリング反応を実現し、詳細な In 触媒の作用機構を様々な方法を駆使し解明している。ここで採用された研究方法論は触媒開発研究の典型となろう。一方、本チームの主研究と位置づけられる炭素拡散金属膜触媒研究では、メタン分解で生じた炭素が金属膜を透過することを確認し、透過した炭素の反応も確認している。また、反応場分離触媒の成果として、ゼオライト反応場に微量のロジウム金属をドーピングした金属コバルトナノ粒子を形成させると、メタンの酸化的リフォーミングに極めて良好な触媒となることを見出した。600°C程度で高収率、高空時収率で量論比の一酸化炭素と水素を与えることができ、従来に無い高性能な触媒であると評価する。

In 触媒やゼオライト触媒で顕著な成果を上げているが、主題である炭素拡散金属膜触媒研究における透過した炭素の水素化カップリング反応による C2 以上の炭化水素類の合成には成功していない。かなり精力的に研究



**3wt%Co-0.005wt%Rh/Mordenite触媒によるメタン部分酸化反応が進行し、 $H_2/CO=2$ の合成ガスを与えた。図は水素スピルオーバー機構 Nature communicationに掲載**

しているが、難渋しているのは現実である。アドバイザーの意見を参考に二酸化炭素の反応にも取り組んでおり、成果を期待する。ゼオライト触媒では酸化的リフォーミングの機構解明とともに、実用を考えたゼオライト反応場設計の研究を引き続き進めて頂きたい。また、外部発表、知財などについても効果的に取り組むことを期待する。

#### ・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

本研究課題は、メタンの活性化機構導出やメタン反応にふさわしい触媒創出を理論計算科学の方法論で実施し、また触媒創出のためのインフォマティクス体制の構築に向けた活動を進めている。錯体触媒系、ゼオライトなどの固体触媒系、2成分金属系触媒など種々の触媒系の理解や創出に関して計算科学の側面から新提案するとともに、領域内の他チームの研究結果を計算科学で支援するなど、本領域全体のハブとしてメタン反応研究を推進する大きな貢献をしていると評価する。

連携成果として、すでに多くの学術論文、研究チーム間の共著論文などを結実しており、本計算研究チームは国際的に認知度も高い。今後も連携の中心となり、研究を推し進めて頂きたい。また、他実験研究チームの計算スキルの向上にも尽力しており、理論研究者の育成に貢献している。さらにこの活動はさきがけ研究者に対しても取り組まれており、若手研究者の育成にも大きく貢献していると評価する。協働研究対象と支援要求は広がる一方であるが、同時に、実験研究チームがこれまで以上に効果的、確実的に検証研究、開発研究が実施できるような計算科学的触媒提案、体制を推し進めてきた。計算科学的な触媒提案を可能にするため、実験-計算チーム間の協力体制がより深化する方向へと進展している。

## ②2016 年度採択課題

### ・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

本研究課題は、生物無機化学と酸化反応を主対象とした金属錯体触媒化学に長年携わってきた研究者が、酸素錯体合成、酸素活性化の化学、選択酸化触媒の開発などの研究基盤のもと、メタンの部分酸化を主題に、生物中のメタンモノオキシゲナーゼとその化学を発展させ、その機能を越えた人工の錯体触媒を高度な配位子設計を通して実現することを目的にしている。研究の基本戦略は、後周期遷移金属オキシラジカル種を発生させる錯体設計をすすめ、そのオキシラジカル種による飽和炭化水素のヒドロキシル化を展開するものである。すでに、銅、ニッケル、鉄、ルテニウムでオキシラジカル錯体の合成に成功している。オキシラジカル種の発生方法は様々な過酸を用いたり、プロトン共役電子移動などを利用する方法であり、各種のアルカンの酸化に成功し、対応するアルコールを得ている。また、ガス状アルカンに対してもこの錯体触媒は酸化機能を持つことを明らかにし、メタンの酸化反応ではさらに加圧条件を適用することで、メタノール等の生成を確認するまでに至っている。このような基礎学術研究で得られた C-H 結合解離エネルギーと反応速度定数との線形関係から、メタン酸化の実現が視野に入ってきたと言える。いよいよ基礎学術レベルから展開研究段階に入り、メタン捕捉機能、生成物排出機能、酸素分子利用のための触媒設計などの取り組みが進み、メタン酸化をより現実的なものにするためのさらなる要素技術が本チームの基礎研究から生まれることを期待する。

### ・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、一酸化窒素と酸素分子との反応で生成する二酸化窒素を実質の酸化剤としてメタンの部分酸化反応を行わせ、再生する一酸化窒素を繰り返して利用することで、結果として酸素分子の 2 個の酸素原子の両方を反応に利用できる一酸化窒素シャトル固体触媒反応系の成立検証を進めるものである。金属触媒によるメタンの C-H 結合解離活性化と金属触媒を保持する金属酸化物担体等による二酸化窒素活性化の考えのもと、担持金属触媒や金属リン酸塩を触媒として検証することを最初の取り組みとして広く進めた。一酸化窒素の分解が起こらない、すなわち窒素分子の生成がない条件と一酸化窒素が反応に必須



となる必要条件のもとで反応試験を実施し、担持金属系触媒がこの条件を満足してジメチルエーテルを生成することを見出した。これにより、シャトル系の成立の可能性が示され、メタンからジメチルエーテルの直接合成という今までに例のない、興味深い結果となった。しかしながら、今後シャトル系成立を厳密に検証するための難しい研究が残されている上、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、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、シャトル系の限界も同時に明らかとなった。これによりシャトル系のさらなる展開は限定的であると判断し、これまでの方向の研究は現時点で一旦収束させる。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。今後はこの触媒系の展開研究に傾注し、特徴ある進展を期待する。

・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

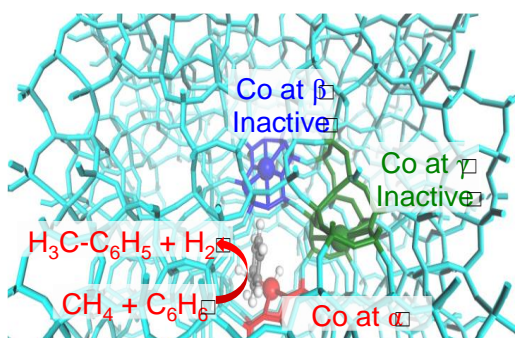
本研究課題は、メタン酸化による C2 化合物合成(酸化カップリング反応)やホルムアルデヒド合成に有効な触媒開発を目的とし、メカノケミカル法による異元素を導入したゼオライト合成、構成元素を位置制御したゼオライト合成、超臨界法による酸素貯蔵材料合成、そして有機塩のゾルゲル法による高表面積金属リン酸塩の合成基盤をもとに、触媒元素を効果的にゼオライトや酸化物組織に担持することで、低温でメタン酸化反応が進行する触媒を見出し始めている。例えば、メカノケミカル法によって合成した異元素導入ゼオライトにさらに貴金属元素を複合化した触媒を用いて、低温でのメタン酸化カップリング反応を低性能ながらも実証し、構成元素を位置制御したゼオライトへ遷移金属イオンを導入するプロセスも見出している。さらに、超臨界法により得た酸素貯蔵材料に異元素を導入することでも、メタンから C2 化合物を与える触媒となることを見出した。これらの触媒は、従来の高温作動型メタン酸化カップリング触媒として選択されてきた触媒物質とは大きく異なり、材料設計の面から反応収率向上の道筋を示すことが期待できる。また、酸素貯蔵材料自身の酸素を利用して酸化カップリング反応においては、反応に必要な多量の酸素貯蔵が可能な材料の開発を進め、成果を示している。加えてエクセルギー解析技術を進化させ、メタン酸化カップリングプロセスの最適化も同時に進行させている。以上のように、重厚な研究チームを連携させ、着実な研究の歩みを続けていることは、高く評価する。しかし、現状は当初目標に対し、十分に満足いくレベルには到達していないため、より高度な触媒材料を登場させ、メタン反応を成立させることを強く望む。

**③2017 年度採択課題 ※中間評価は未実施**

・片田チーム：メタンによる直接メチル化触媒技術の創出

本研究課題は、PET 原料の直接合成などを目指し、芳香族炭化水素などのメタンによるメチル化を実現する触媒活性点と反応場を創製するものである。近年に見いだしたメチル化

作用を有するゼオライト担持遷移金属触媒について、先駆的合成・キャラクタリゼーション技術を駆使し、イオン交換サイトの微細構造、遷移金属種の特徴が反応段階の速度に及ぼす影響を明らかにし、高性能触媒の開発指針を確立することを進めている。



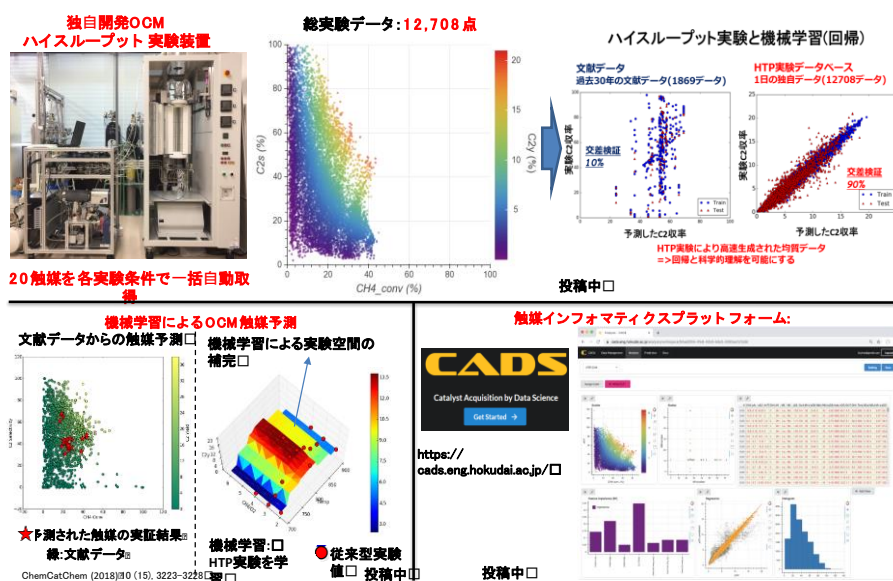
ゼオライト触媒研究を長く携わってきた

研究者を代表に、ゼオライト合成の専門と触媒空間解析と作用場解析の専門家の協同に大いに期待する。「実用性ある新技术を開発」の目標を現実のものにしていきたい。

・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

本研究課題は、実験・計算・データ科学を統合したキャタリストインフォマティクスを推進し、新しい革新的な触媒探索・反応機構解明技術を創出することを目的とする。本研究は

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・プラットフォームの3本柱を軸に遂行しており、メタン変換プロセスを対象とした新しいメタン変換触媒・最適プロセス・反応経路機構の完全解明・制御を実現し、触媒探索・設計を革新させることが期待できる。



触媒探索・設計を革新させることが期待できる。

既にこれまで論文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様々なデータ科学的手法を展開し、評価に必要な要素を明確にし、新しい触媒構成元素を提案するなどしている。同時にハイスループットの装置の立ち上げを終え、膨大なデータの収集に成功し、これから本格的なデータ科学へ発展しそうである。また、触媒プラットフォームをWeb上に立ち上げ、触媒データベースの自立的な発展を促す端緒を切っている。

#### ・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

本研究課題は、世界最高水準の分解能を誇る原子分解能電子顕微鏡を用いて、実ガス雰囲気中で触媒が示す構造・電子状態のダイナミック変化をリアルタイムで分析することを主題にしている。そのために、補完的に放射光分光分析、理論計算、そしてダイナミック分析結果のフィードバック対応のためのナノ触媒合成・評価するチーム構成となっている。この補完的機能は必ずしも松村チームに属す必要は無く、本研究領域の個々の研究チームが独自に保有すれば良く、それぞれの目的に応じて構造・電子状態のダイナミック解析を実施する体制である。すなわち基盤的な「触媒計測・評価チーム」として、当研究領域にまたがる様々な課題に対して横断的な研究協力や共同研究を行うこととしている。

隔膜型の試料ホルダーとガス供給システムや反応気体分析の装置を電子顕微鏡室に配備し終えている。これからが本番である。

#### ・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

本研究課題は、気体と液体の中間状態(超臨界状態)にあるメタンを均一系・不均一系触媒の存在下で反応させ、メタンの化学変換を行うものである。ここでは超臨界メタンの持つ特性、すなわち高濃度分散および分離の容易さを活かして、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)の開拓および工業化を目指す。

現状では高圧システムの構築と同時に、可能な触媒選択を進めている。超臨界メタンの反応化学やその場での触媒化学は未踏な部分が多く、着実な研究進展を望んでいる。同時に、その化学や技術が分かれば、他の研究チームが開発中の触媒へ応用が可能と考えており、他チームの触媒開発の方向性にまで影響する可能性を秘めている点で、高い期待を持っている。

#### (2) 研究領域全体として見た場合の特筆すべき研究成果の見通し

本研究領域は、メタン変換の革新的触媒創出とメタン変換の達成という共通項があるので、当研究領域内のどの研究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がより重要であり、また他チームの成果を別チームが利用、応用することの重要性をここでは強調したい。そのような成果は、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、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、荘司チームで開発されたメタン高圧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。いずれこの反応方法論は現在進行中の山下チームの超臨界条件での適用に発展する可能性が高く、その成果によっては錯体触媒の持つ潜在力を大きく顕在化させる可能性もある。

一言で言えば「ワンチーム」の考えで進めれば、当研究領域全体として大きな進展がある



と見通している。

### (3) 研究成果の科学的・技術的な観点からの貢献

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るであろう、また見いだされつつある、さらには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。問題は評価であり、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、国際的なインパクトを追求している。従って、いたづ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ている。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ものとはしていない。

メタン変換のプロジェクトは韓国や中国でも同時進行的に進んでいるが、知る限り、本研究領域が指向しているような全く新しい触媒系を開発するのではなく、既存のものの変更であったり、反応条件を厳しくしたプロセス検討である。しかしそれでも、達成レベルによっては高いインパクトを持つ。言い換えると、本研究領域の取り組みは独自性が極めて高いとの認識である。この方向の取り組みを続ける限り、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と考える。

#### ①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 243 件(1期:108件、2期:99件、3期:36件)、国際会議での招待講演数が 176 件(国内は 104 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ている。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 Anew. 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。

### (4) 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、実装を想定しないで研究する物ではない。常に出口を意識しながら研究の方向性を考えるようにしているが、現時点で、産業や社会への展開・実装の見通しの可能性に言及することはできない。それぞれの研究で、物と知は生まれているが、産業が利用を意識するまでの触媒のパフォーマンスは出ていないのが現状である。しかし、進んでいるそれぞれの研究は決して後ろ向きではなく、実装を見据えながら、着実に進んでいることは確かである。その歩みがあるのは価値ある学術があるためであり、析を見据えて歩

みを止めることは無い。従って、着実に特許の出願等は各チームに進めるようにしている。以下はその状況である。

#### ①特許出願実績と状況

各チームからの特許出願数は23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。

領域運営としては、領域会議、サイトビジット等において特許出願を含めた成果発信の可能性について検討しており、特に触媒創出のグループには適切なアプローチをとれるように指導している。また、各チームの研究フェーズを把握し、知財等についても必要に応じサイトビジット等に企業出身のアドバイザーに同席頂く運営体制を実施している。

#### ②産業や社会への展開・実装の見通し

メタン変換技術の実装の見通しについては上述の通りであるが、本領域研究によって得られた物質やプロセスは波及効果的展開が期待される。以下その例である。

1. 根粒触媒を貴金属に代わる普遍元素触媒として燃料電池触媒に応用
2. バイオプラスチック生産のための細胞触媒
3. 光駆動型根粒型触媒による二酸化炭素固定
4. 簡易高圧化学反応装置
5. 触媒インフォマティクス

#### (5) その他特記事項

##### ①国内外の顕彰・受賞等

藤田武志：Highly cited researcher 2018 クラリベイト・アナリティクス社  
2018年10月

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年6月

朝倉清高：触媒学会学会賞 触媒学会 2015年度

吉澤一成：Brown and Williamson Award Louisville University 2016年9月

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年1月

吉澤一成：錯体化学会貢献賞 錯体化学会 2018年7月

吉澤一成：名誉教授 バンドン工科大学 2019年10月

小島隆彦：錯体化学会学術賞 錯体化学会 2018年7月

阿尻雅文：KONA 賞 公益財団法人 ホソカワ粉体工学振興財団 2017年3月

井上亮平：Poster Award Supergreen 2017, the 10th International Conference on

Supercritical Fluids 2017年12月

鈴木康介：日本化学会進歩賞 日本化学会 2018年3月

鈴木康介：石油学会奨励賞 石油学会 2019年5月

## ②報道、プレスリリース

### 【阿部チーム】

1. 毎日新聞「温室効果ガス→有用ガス 効率よく合成 新触媒開発」2019年3月7日
2. 週刊ダイヤモンド「二酸化炭素を有用な化学原料に」2019年10月26日号
3. 月刊JETI「温室効果ガスを有用な化学原料に転換 ー低温活性で長寿命な組みひも状の触媒を創成」2019年10月号
4. JST NEWS「温室効果ガスを有用化学原料に変える触媒を開発 地球温暖化抑止への突破口に」2019年4月号
5. プレスリリース「温室効果ガスを有用な化学原料に転換」JST、物質・材料研究機構、高知工科大学、東京工業大学共同、2019年2月15日

### 【荘司チーム】

1. 中日新聞「医薬品やプラに使う化合物 大腸菌使いエコに製造 名大新手法開発」2018年6月5日
2. 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年6月11日
3. 化学工業新聞「フェノールの合成大腸菌で効率良く」2018年6月
4. 化学工業日報「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年9月11日
5. プレスリリース「世界初！ベンゼンをフェノールに変換する細菌を開発～酵素のスイッチをONの状態にする化学物質を細菌に取り込ませる新規手法～」2018年6月4日
6. プレスリリース「気体を安全に加圧可能な高圧反応装置の開発！ 不活性な気体資源の有効活用に道筋」2019年8月20日

### 【山中チーム】

1. 日刊工業新聞「メタンガス反応温度 250°C 低下 北大がコバルト触媒」2018年8月15日
2. 日経産業新聞 天然ガス、簡単に液体燃料、2019年3月22日
3. TBS テレビ「未来への起源、天然ガスを液体燃料へ一度で転換できるインジウム触媒」2019年7月7日 22:54-23:00

## 7. 総合所見

### (1) 研究領域のマネジメント

最初に、かくも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の多方面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。研究を実施する側においてもリスクが発生する可能性のある中、採択された各チームは実に精力的に研究を実施している。領域をマネジメントする側として、各研究者が決して右往左往するような研究を実施すること無く、それぞれに特徴のある中で、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つもりである。甲斐あっていくつかのチームはゼロから一を作り出したと見ている。これにはチーム間連携のマネジメントが有効に機能したと見ており、今後もさらにこれを推進したい。もちろん難航している課題も多くあるが、必ず同時に想定していなかった新しい物を発見していることがあり、難度の高い研究が駆動力となっている証となった。これにはアドバイザーからの厳しくも有益な様々なコメントが大いに役立っている。

### (2) 研究領域としての戦略目標の達成に向けた状況

まだまだである。革新的触媒については、多くの研究チームでゼロから一を作り出したが、一を十にするまでには至っていない。例えば第1期で言えば、根粒触媒を生み出し、高いドライリフォーミング活性を達成したが一段の進展が必要である、super MOB はできたが、まさにこれはゼロから一の段階で、なすべきことは山積している、デコイ-酵素系も最終ゴール目前であり、もちろんゴールしても先は長い、等々の状況である。しかし、いずれも高い可能性があり、大きな影響を与える成果が控えていると言う点で、前夜との認識にいる。触媒創出技術の面では、計算科学とデータ科学(触媒インフォマティクス展開)にくわえて高度な分析と物質合成の横断的連携はかなり効果を発揮することが見えてきたので、より高度な連携とは何かを探るべく、傾注したい。

### (3) 本研究領域を設定したことの意義(研究開始以前と現時点との比較を念頭にして)

触媒化学の進歩は年々遅くなっている。それは達成しようとする反応が複雑であったり、極度に高い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が難度の高い物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、事をなし得ようとするので、冷ややかに見る触媒研究者もいれば、力を得た研究者も多くいたはずである。挑戦する雰囲気を作ったと言える。しかし、結果によっては反作用もあるので、これからが重要で

ある。

#### (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発展すると思われる。まだ最終的な方法論の姿は見えないが、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を生み出すために必須のものと考えられる。複雑機能物質の最先端を行く触媒での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、意識させた。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、メタン変換反応と言う難題に直面すると太刀打ちできず、立ちすくむ時があったのではないかと。しかし、これは先入観がなしている現象で、本研究領域で多くの研究者一同に会し、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」に変わっていったのは驚きであった。個人力ではできないか、やろうとしないことができるのは、今回の CREST 研究領域「革新的触媒」の持つ強い力のなせる技であろう。

以上