

研究領域「電子やイオン等の能動的制御と反応」事後評価（課題評価）結果

1. 研究領域の概要

本研究領域では、電気や光などを用いて電子やイオンの能動的な制御を狙い、革新的な化学反応技術を創出することを目的とします。これによって、従来にはない物質生産プロセスを実現させ、既存技術における反応制御の難しさ、収率や選択性の低さ、高い反応温度、平衡制約などから脱却できる新たな化学反応の体系を確立することを狙います。

具体的には、電気化学や光化学、非在来型プロセスなどを単独あるいは組み合わせることにより、電子やイオンを能動的に制御し、これによって化学反応の選択性向上、平衡制約からの脱却といった次世代反応場の開拓を狙います。高効率な物質合成に資する化学反応プロセスのみならず、反応プロセスを構築するための新規材料開発、例えば従来にはない中温域で作動する新規イオン伝導材料の開発やこれら反応・材料の新規評価方法の確立、そのために必要となる理論化学の援用によるモデル化と実験系へのフィードバックなども研究対象に含めます。

化学(電気や光など)、反応プロセス(フローリアクターなど)、材料(電極材料、固体イオニクス材料、触媒など)、計測、理論の融合からなる次世代反応プロセスの創出により、持続可能な社会の実現を目指します。

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(先端的低炭素化技術開発及び先端的カーボンニュートラル技術開発(ALCA-Next)を除く。)の実施に関する規則」における「第4章 事業の評価」の規定内容に沿って実施した。

2-2. 評価対象個人研究者及び研究課題

2020年度採択研究課題

- (1) 岩佐 豪 (北海道大学大学院理学研究院 助教)
近接場光による励起状態制御の理論
- (2) 竹入 史隆 (理化学研究所開拓研究本部 研究員)
複合アニオン固体電解質を用いたヒドリドインターカレーション反応の開拓
- (3) 轟 直人 (東北大学大学院環境科学研究科 准教授)
異方歪みの能動的制御による二酸化炭素の高効率・高選択変換
- (4) 中田 彩子 (物質・材料研究機構ナノアーキテクトニクス材料研究センター 主幹研究員)
担体の電子状態制御による金属ナノ粒子触媒活性化の機構解明と設計
- (5) 中田 明伸 (京都大学大学院工学研究科 講師)
光励起キャリアを触媒サイトに誘導する高分子光触媒の創製
- (6) 中村 崇司 (東北大学多元物質科学研究所 准教授)
化学ポテンシャル制御による特殊反応場形成技術の創出
- (7) 永村 直佳 (物質・材料研究機構マテリアル基盤研究センター 主任研究員)
電位制御マルチプローブと顕微分光による微小領域化学反応オペランド可視化技術の開発
- (8) 野内 亮 (大阪公立大学大学院工学研究科 准教授)
原子層ホットエレクトロントランジスタによる低温高効率反応誘起
- (9) 久富 隆史 (信州大学先鋭領域融合研究群 教授)
電荷移動が制御された高効率可視光応答型光触媒の開発
- (10) 山崎 康臣 (東京大学大学院工学系研究科 助教)

2層の反応溶液と分子の自発的な動きを利用した高耐久な光触媒反応

2-3. 事後評価の実施時期

2023年10月29日（日）事後評価会開催

2-4. 評価者

研究総括

関根 泰 早稲田大学理工学術院 教授

領域アドバイザー

雨澤 浩史 東北大学多元物質科学研究所 教授

五十嵐 達也 富士フイルムホールディングス（株）CTO室 統括マネージャー

佐藤 康司 ENEOS（株）執行役員・中央技術研究所長

佐藤 縁 産業技術総合研究所省エネルギー研究部門 総括研究主幹

里川 重夫 成蹊大学理工学部 教授

杉本 渉 信州大学先鋭材料研究所／繊維学部 卓越教授

堂坂 健児 本田技研工業（株）日本本部地域事業企画部 課長

中井 浩巳 早稲田大学理工学術院 教授

中林 亮 （株）AIST Solutions プロデュース事業本部 プロデューサー

濱川 聡 産業技術総合研究所 執行役員／材料・化学領域 領域長

山下 弘巳 大阪大学大学院工学研究科 教授

吉田 朋子 大阪公立大学人工光合成研究センター 教授・副センター長

柳 日馨 大阪公立大学研究推進機構 特任教授

和田 雄二 東京工業大学 名誉教授

外部評価者

該当なし

3. 総括総評

今年度は、10名の研究者(3期生)が評価対象となった。2020年秋にオンライン審査で採択され、採択期間のすべてをコロナ禍の中で運営するという不運な世代であったが、オンラインでの議論などを活発に行い、領域内での多数の共同研究も行われ、終わってみれば全員がそれぞれ素晴らしい成果を残した。

岩佐研究者は、「物質近傍に局在する近接場光を用いて励起状態をどのように制御できるか」に理論的に挑戦した。領域内での連携を進め、当初考えていた目的についてはその概念を実証することが出来た。竹入研究者は、電解質・電極を含めたヒドリドイオニクス材料の開拓を構造・組成に高い自由度を有する複合アニオン化合物という観点から推進し、見出した材料から構成される電気化学セルを用いた未踏のヒドリドインターカレーション反応に挑戦した。メカノケミカル反応によるヒドリド準安定相の創出は、想定していなかった発見であった。轟研究者は、触媒/圧電デバイスを用い、異方ひずみの能動的制御による電気化学的二氧化碳素還元法を高効率・高選択化する反応制御法を開発し、異方ひずみ下におけるその場評価手法を用い、ひずみにより誘起された構造・電子状態の変化と触媒特性の関係を明らかにすることを狙った。デンドリマー分子による表面修飾した二氧化碳素還元電極に関する研究で、当初想定した以上の成果が得られた。中田彩子研究者は、自身が開発してきた大規模DFT計算に特化したプログラムCONQUESTを用いて、電子密度を最適化してエネルギーや原子に働く力を計算することで、構造探索や各部位の安定性の議論を進めた。機械学習手法を導入することにより、複雑な大規模系の中から特異的なサイトを効率的かつ客観的に判別、解析することができるようになった。中田明伸研究者は、水を電子源としたCO₂還元のようなエネルギー変換型光触媒の高効率化に不可欠である、光励起により生成した電荷(キャリア)を多電子酸化還元サイトへと「能動的に制御する機能」を光触媒材料設計に組み込むことを狙い、太陽電池や有機ELの分野で活用されている「共役系高分子」に着目した研究を進めた。多くの成果を一流誌などに出版し素晴らしい活躍を見せた。中村研究者は、固体電解質に電圧を印加すると、キャリアイオンに対応した化学ポテンシャルが変動する現象に着目して、アニオン(陰イオン)伝導体上に形成される特殊反応場を活用し、対象材料にアニオン種を導入する、アニオン組成を自在に制御する技術を開発することを目指した。電気化学的アニオン組成制御および高速アニオンドープによる準安定相の創出の実証に成功し、素晴らしい成果をあげた。永村研究者は、オペランド分光による反応機構解明を、放射光顕微XPS・XAFSと実験室顕微ラマン分光で情報を補完し合うことによるマルチモーダル解析手法の確立によって進めた。野内研究者は、半導体工学技術により作製する大面積素子を用いることで、反応系のスケールアップを目指し、近年進展著しい原子層科学における知見の活用により、ホットキャリアの注入効率の最大化による反応効率向上を図った。久富研究者は、酸窒化物光触媒における能動的な電子・正孔の分離輸送の促進と、それを利用した可視光水分解反応の実現・高効率化を目指した。光触媒に対して水素生成助触媒と酸素生成助触媒をサイト選択的に共担持する手法を開発した。山崎研究者は、混和しない二層の溶液を用いて反応場が二つに分離された新しい光触媒系の構築を試みた。層間移動反応を実際に効率的な水素発生反応へ繋げることもできたため、光を用いてイオンを能動的に動かして化学反応を高効率化するという本領域の目標の達成に貢献できた。

このように、10名はいずれも独創的で素晴らしい研究を重ね、予算執行などにおいても計画に基づいたしっかりした研究を行った。さきがけの領域内共同研究などにより、異分野融合などの共同研究の展開があったことも素晴らしい。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 近接場光による励起状態制御の理論

2. 個人研究者名

岩佐 豪（北海道大学大学院理学研究院 助教）

3. 事後評価結果

本研究では、「物質近傍に局在する近接場光を用いて励起状態をどのように制御できるか」に理論的に挑戦した。近接場光と分子の相互作用を記述するための双極子近似を超えた第一原理計算手法を開発し、狙いの電子励起状態へと励起する電磁場の空間構造を設計する方法論を確立し、分子の反応性を能動的に制御する仕組みを打ち立てることを目指して研究を行った。研究当初に構想していた励起状態制御は、遷移密度を用いた一般化遷移モーメントを目的変数として、近接場光の制御因子をパラメータとして計算可能な物理量にすることで、励起状態制御を、あるパラメータ空間における最適化問題に落とし込むことができた。また、複数の励起状態間の大小関係に関する束縛条件を取り込むことも可能である。当初考えていた最大の目的についてはその概念を実証することが出来た。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 複合アニオン固体電解質を用いたヒドリドインターカレーション反応の開拓

2. 個人研究者名

竹入 史隆（理化学研究所開拓研究本部 研究員）

3. 事後評価結果

本研究では、電解質・電極を含めたヒドリドイオニクス材料の開拓を構造・組成に高い自由度を有する複合アニオン化合物という観点から推進し、見出した材料から構成される電気化学セルを用いた未踏のヒドリドインターカレーション反応に挑戦した。ヒドリド導電現象を用いた電気化学反応(セルの作動)を実証したことは当該分野において大きな進歩であり、このさきがけ研究をきっかけに開始した研究が論文出版にまで至った点も含めて、一定の成果が得られた。また、メカノケミカル反応によるヒドリド準安定相の創出は、想定していなかった発見であった。電解質の開発をはじめ、着実に目標に近づいている。ヒドリド導電に関する技術的な優位性が保たれているうちに新反応・新物質を見出すことが期待される。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 異方歪みの能動的制御による二酸化炭素の高効率・高選択変換

2. 個人研究者名

轟 直人（東北大学大学院環境科学研究科 准教授）

3. 事後評価結果

本研究では、触媒/圧電デバイスを用い、異方ひずみの能動的制御による電気化学的二酸化炭素還元法を高効率・高選択化する反応制御法を開発し、異方ひずみ下におけるその場評価手法を用い、ひずみにより誘起された構造・電子状態の変化と触媒特性の関係を明らかにすることを狙った。2021年度後期にJSTのSciFoS (Science For Society) 活動に参加し、社内の二酸化炭素の削減を目指す鉄鋼メーカー、重工メーカー、自動車関連メーカーの技術者にヒアリングを行ない、さきがけ研究の妥当性・将来性について検証した。一部のメーカーの技術者には自身が参加する学会の委員に入って頂くなど、今後に繋がるネットワークを構築することができた。また、本研究期間中にさきがけのネットワークを活かし、共同研究を推進できた。特に、 dendrimer 分子による表面修飾した二酸化炭素還元電極に関する研究は、当初想定した以上の成果が得られ、その後のディスカッションから派生した形で企業との共同研究に繋がるテーマとなった。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 担体の電子状態制御による金属ナノ粒子触媒活性化の機構解明と設計

2. 個人研究者名

中田 彩子（物質・材料研究機構ナノアーキテクトゥクス材料研究センター 主幹研究員）

3. 事後評価結果

本研究では、中田研究者が開発してきた大規模 DFT 計算に特化したプログラム CONQUEST を用いて、電子密度を最適化してエネルギーや原子に働く力を計算することで、構造探索や各部位の安定性の議論を進めた。高精度且つ高効率な計算手法であるマルチサイト法により、絶縁体・半導体・金属の種類を問わず高精度な大規模第一原理 DFT 計算を行った。ナノ粒子のサイズ・形状や担体への担持だけでなく、担体へ欠陥を導入し構造や電子状態が変化した際に、ナノ粒子との相互作用がどのように変化するかを解析した。実際の実験で用いられているサイズに近い数 nm サイズの金属ナノ粒子を担体上に担持させ、その構造や電子状態のサイズ・サイト依存性や反応エネルギーを計算することで、実在系で担体が金属ナノ粒子触媒に与える影響を詳細に解析した。機械学習手法を導入することにより、複雑な大規模系の中から特異的なサイトを効率的かつ客観的に判別、解析することができるようになったのは、大きな収穫であった。このような解析は構造的特徴に関しては近年広く取り組まれていたが、電子状態の解析に発展させることができたことで、大規模第一原理計算の利点を生かした独特の解析が可能になった。また、数多の構造パターンの取り扱いに関して、アドバイザー等の助言のもと、機械学習力場の利用に取り組めたことは非常に有意義だった。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 光励起キャリアを触媒サイトに誘導する高分子光触媒の創製

2. 個人研究者名

中田 明伸（京都大学大学院工学研究科 講師）

3. 事後評価結果

本研究は、水を電子源とした CO₂ 還元のようなエネルギー変換型光触媒の高効率化に不可欠である、光励起により生成した電荷(キャリア)を多電子酸化還元サイトへと「能動的に制御する機能」を光触媒材料設計に組み込むことを狙い、太陽電池や有機 EL の分野で活用されている「共役系高分子」に着目した。共役系高分子は半導体性を有するだけでなく、分子ユニットのドナー/アクセプター骨格を変調することでフロンティア軌道の分布を制御することも可能である。一方で、その制御された励起キャリアを触媒サイトに能動的に結びつける“光触媒として”の合理設計は未開拓であった。結果として超高難易度反応の実証に向けた土台の構築に成功した。本研究成果は、英国王立化学会の材料系ハイインパクトファクタージャーナルである *J. Mater. Chem. A* 誌に掲載され、さらに研究者が *J. Mater. Chem. A Emerging Investigators 2022* に選出されたことから国際的にも波及効果があった。また、2022 年に研究者は日米独先端科学 (Frontier of Science: FoS) シンポジウムにスピーカーとして招聘され、日本の若手化学者を代表して本研究を含めた光触媒研究について講演し、多様な科学分野の研究者と意見交換する機会を得た。さらに、本領域の研究者交流を足がかりに、本領域研究者の山崎研究者、岩佐研究者をはじめとする研究者と共同で、研究者自身を領域代表とする科研費学術変革領域 B「光触媒協奏学」の発足に至り、関連研究の更なる協奏的な発展を強力に推進している。加えて、研究期間中 2022 年 4 月に中央大学助教から京都大学講師へと昇任異動した。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 化学ポテンシャル制御による特殊反応場形成技術の創出

2. 個人研究者名

中村 崇司（東北大学多元物質科学研究所 准教授）

3. 事後評価結果

固体電解質に電圧を印加すると、キャリアイオンに対応した化学ポテンシャルが変動する現象に着目して、アニオン（陰イオン）伝導体上に形成される特殊反応場を活用し、対象材料にアニオン種を導入する、アニオン組成を自在に制御する技術を開発することを目指した。電圧印加という簡便な操作により、極限的な反応条件（超高化学ポテンシャル条件）を実現することが可能となるため、従来困難であったアニオン組成の自在制御が可能となる。本技術により「アニオン機能の活用」という新しい材料開発戦略に基づいた機能開拓や新物質探索を目指した。結果として電気化学的アニオン組成制御および高速アニオンドーピングによる準安定相の創出は研究期間内に実証することができた。またこれらの成果により PCT 特許出願 2 件、論文 2 報、招待講演 2 件の成果を挙げた。コンセプトの実証および新物質探索に繋がる基盤技術開発に成功した点は評価できる。また異種アニオンの導入には、アニオン種の大きさが重要因子となることを見出した。本技術をさらに高度化するために解決すべき課題を明確化することができた。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 電位制御マルチプローブと顕微分光による微小領域化学反応オペランド可視化技術の開発
2. 個人研究者名
永村 直佳（物質・材料研究機構マテリアル基盤研究センター 主任研究員）
3. 事後評価結果

本研究では、オペランド分光による反応機構解明を、放射光顕微 XPS・XAFS と実験室顕微ラマン分光で情報を補完し合うことによるマルチモーダル解析手法の確立によって進めた。特に半導体素子から触媒まで様々な応用が提案されている低次元ナノ材料について、材料および多様なデバイス構造におけるオペランド反応の電子状態や化学状態の空間分布をハイスループットで可視化できる革新的分析技術を確立し、加速する材料・デバイス開発に貢献することを本研究の目的とした。顕微分光を組み合わせたマルチモーダル解析技術、サイエンスの追求のみならず材料・デバイス開発に足る計測効率を持つ新たなオペランド解析技術という大枠では世界的にも注目度が高い領域であるため、今後、具体的に研究者の提案する手法で成果を出していくことが期待される。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 原子層ホットエレクトロントランジスタによる低温高効率反応誘起

2. 個人研究者名

野内 亮（大阪公立大学大学院工学研究科 准教授）

3. 事後評価結果

本研究は、半導体工学技術により作製する大面積素子を用いることで、反応系のスケールアップを目指した。近年進展著しい原子層科学における知見の活用により、ホットキャリアの注入効率の最大化による反応効率向上を図った。加えて、ホットエレクトロントランジスタの残る一つの要素であるコレクタを模した構造を利用した反応アシスト効果も駆使することで、低い環境温度下でも反応を高効率に誘起する新たな反応系の構築を目指した。結果として原子層ホットエレクトロントランジスタを用いるという新しい反応制御コンセプトを提示できた。その主要要素である原子層トンネル接合においてどういった現象が起きるのか、という基本的な理解を成し遂げたことも意義深い。化学において従来使われている電氣的デバイスとは異なる素子構造を利用する課題であり、半導体工学と化学の更なる融合を進めたという点において、基礎科学的意義が大きい。反応の低温化・高効率化を目指す本研究は、エネルギー使用量の格段の削減に資するものと考えられる。今後、有用な反応系への展開を実現できれば、社会・経済への波及効果も大きくなると期待できる。特に、本研究の特長である高エネルギーホットキャリアの形成に関して、高安定分子の活性化につながれば、広く注目を集める技術になり得る。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 電荷移動が制御された高効率可視光応答型光触媒の開発

2. 個人研究者名

久富 隆史（信州大学先鋭領域融合研究群 教授）

3. 事後評価結果

可視光応答性の非酸化物光触媒については、粒子形態が制御された低欠陥密度の単結晶性微粒子の合成が難しいうえに、バンドギャップの狭窄に伴い反応の駆動力も低下するために、光電着法による助触媒共担持は困難であり、そのような特性は実現していない。本研究は、酸化窒素光触媒における能動的な電子・正孔の分離輸送の促進と、それを利用した可視光水分解反応の実現・高効率化を目指した。そのために、フラックス中での粒子形成、低価数金属カチオンドーピング、構造や組成を考慮した前駆体酸化物の利用等の手法により、異なる結晶面を露出した高結晶性の酸化窒素光触媒微粒子を調製した。さらに、得られた光触媒に対して水素生成助触媒と酸素生成助触媒をサイト選択的に共担持する手法を開発した。サイト選択的助触媒担持の検討に資する異方的単結晶酸化窒素微粒子の合成法の確立、含浸法・光電着法を併用しての助触媒共担持技術の確立、光電気化学的手法による電荷分離・反応特性の評価の観点から研究を進めた。光触媒微粒子の半導体物性や反応性の空間分解計測は領域内で計測技術を研究するさきがけ研究者と共同で実施した。成果をもとに特許を出願し、新技術説明会を通じて新技術シーズを提供することができた。

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 2層の反応溶液と分子の自発的な動きを利用した高耐久な光触媒反応

2. 個人研究者名

山崎 康臣（東京大学大学院工学系研究科 助教）

3. 事後評価結果

分子性触媒を用いた光触媒的な水素発生反応や CO₂還元反応における、反応効率や耐久性に関する多くの課題を解決し得る新しい光触媒系の創製を目的とした研究である。混和しない二層の溶液を用いて反応場が二つに分離された新しい光触媒系の構築を試みた。それぞれの溶液層を「酸化反応場」と「還元反応場」として利用する、もしくは片方の溶液層にのみ光を照射することで「明反応場」と「暗反応場」を分離し、さらにレドックスメディエーターがその酸化還元状態に応じて自発的に層間を行き来するサイクルを開発することで、中間体による光吸収や電荷再結合の起こりづらい高耐久・高効率な光触媒系の構築が可能になることが期待できる。また、反応場の分離と層間移動サイクルを用いて電荷再結合が効果的に抑制された場合には、逐次的な励起過程を経る Z スキーム型の電子移動反応を含む高度な反応系へと応用できる可能性があり、例えば水の完全分解や水を電子源とした CO₂還元反応等、従来の単層溶液系では達成が困難であった反応を達成できる可能性も十分に高いと考えられる。アセトニトリル-水溶液系等のように極性の差が小さい二層溶液を用いることで電荷数の変化に対する分配比の変化が大きくなり、メディエーターの効果的な層間移動反応を可能にした。この層間移動反応を実際に効率的な水素発生反応へ繋げることもできたため、光を用いてイオンを能動的に動かして化学反応を高効率化するという本領域の目標の達成に一部貢献できたのではないかと考えている。更なる検証は不可欠であるが、水を電子源とした CO₂還元光触媒反応等の高度な反応系への応用可能性も示すことができた。