

最先端・次世代研究開発支援プログラム
事後評価書

研究課題名	低炭素社会基盤構築に資するイノベイティブ物質変換
研究機関・部局・職名	名古屋大学・物質科学国際研究センター・教授
氏名	唯 美津木

【研究目的】

医薬品、農薬、先端機能性材料、機能性プラスチックやそれらを作るための基礎化成品などの多種多様な有用化合物の合成に必要とされる物質変換に加えて、燃料電池などの次世代エネルギー変換においても、触媒は重要な役割を果たしている。必要な物質を効率的に合成できる新しい触媒系の開発、それらの触媒を効率的に設計・調製するための触媒表面の構築法の開拓、優れた触媒の複雑な働きや触媒作用の理解は、新しい物質変換を生み出す上での基盤となる。

これらの物質変換反応において触媒の果たす役割は極めて大きいが、多くの触媒プロセスに汎用されている固体触媒は複雑系である。担持金属触媒、金属酸化物、多孔性材料など、バリエーションに富んだ物質群が固体触媒材料として用いられているが、触媒反応に関わる固体触媒表面の構造は単純ではない。多様な触媒プロセスが固体触媒によって実現されている今日においても、触媒表面の構造、反応機構、ダイナミックな触媒の働きは依然としてブラックボックスである。特に、一般的な固体触媒である担持金属触媒の多くは、前駆体の金属種を表面でナノ粒子や酸化物に変換することで調製されるが、サイズや形状、配位構造の異なる金属種が形成されてしまうため、高度な化学活性を担う触媒活性構造やその働きを分子レベルで理解することは難しい。一方で、高い触媒活性を持つ触媒活性構造を分子レベルで自在に表面に設計・構築するための一般的な触媒表面の調製方法も限られている。ダイナミックな触媒作用を理解するためには、触媒反応が進行しているその場 (*in situ*) で、触媒の構造を直接捉える構造解析が必要であるが、複雑な固体触媒の構造を理解した上で、そのダイナミックな構造変化を捉えることは、世界的にも殆ど実現されていない。

これらの研究背景を踏まえ、代表者は、これまでに考案してきた固体表面を媒体とした触媒調製法である金属錯体の固定化法や表面での金属配位構造の選択的な変換に基づく触媒表面の創出に加え、固体表面の化学修飾法、表面反応空間場の構築法を組み合わせて、酸化物表面上に新しい触媒活性構造とその近傍の選択的な触媒反応場を構築することを目指した。さらに、代表者が得意とする放射光 XAFS を利用した触媒構造解析法を発展させ、触媒のダイナミックな構造変化や固体触媒のミクロ構造を捉えることができる *in situ* 時間・空間分解 XAFS 分光法を駆使して、触媒のダイナミックな動きやミクロ構造を明らかにし、固体触媒作用と活性要因の理解に繋げることも目指した。

**グリーン物質変換のための
固体触媒表面分子レベル設計
触媒機能創出**

- ・金属錯体の固定化による触媒活性構造の分子レベル構築
- ・固定化金属錯体の構造変換による微小金属ナノクラスター触媒の創製
- ・固定化表面の化学修飾による触媒機能化
- ・表面モレキュラーインプリントング触媒による形状選択的触媒反応
- ・Ce系複合酸化物の酸素吸蔵・放出能を利用したメタンの活性化

**触媒のダイナミック機能を理解する
時間・空間分解触媒構造反応計測**

- ・X線集光ビームを用いた顕微XAFS法の開発
- ・X線マイクロビームを用いたNi/CZ触媒粒子1粒のXAFS構造解析
- ・X線ナノビームを用いた顕微XAFS計測によるPt/CZ触媒粒子内部のCe酸化状態の可視化
- ・in situ時間分解XAFS法による触媒活性構造形成過程の動的構造解析
- ・in situ時間分解XAFS法による合金触媒のダイナミック構造変化の解析

【総合評価】

	特に優れた成果が得られている
	優れた成果が得られている
○	一定の成果が得られている
	十分な成果が得られていない

【所見】

① 総合所見

本研究で、表面修飾による多数の機能触媒の設計を精力的に行っており、XAFSを中心とした構造解析基づいた機能と構造の関連を明らかにするところに特徴がある。多数の学術論文を報告しており、個々のレベルは高い。研究自体は精力的に行われ、研究課題の成果も上がっていると評価できる。ただし、他の類似研究と比較してどこにオリジナリティーがあるか、また、本研究の成果に基づきどのような優れた触媒が作られたかが明確ではなく、研究課題の「低炭素社会基盤構築」との具体的関連が見えない。

研究全体が触媒のキャラクタリゼーションのための研究になっている印象で、研究のための研究の感があり、論文を書くことが成果であるような感じを受ける。本支援プログラムはグリーンイノベーション、ライフイノベーション創出に具体的につながる研究の支援であり、したがって、今後の課題として、本研究課題で得られた基礎的な成果を基に、低炭素社会構築、二酸化炭素排出削減、省エネルギー技術開発、持続可能な社会の建設、グリーンプロセス等々に対応したイノベイティブな触媒システム及びプロセスの実現を目指しての研究を期待する。

② 目的の達成状況

- ・所期の目的が

(□全て達成された　・　■一部達成された　・　□達成されなかった)

研究自体は精力的に行われおり、研究成果も評価できる。固定化による固定化金属錯体触媒の創製のテーマでは、固定化表面との化学結合が反応分子の活性化に関するメカニズムを提案したこと、Rh-Mo 多核クラスターの固定化・表面構造変換による選択酸化触媒を調製したこと、Mn クラスターのリーチングが完全に抑制され、複数

回の利用でも安定した酸化活性・選択性を発現することを明らかにしたこと、メタンの活性化と水によるカーボンのガス化を促進して定常的な触媒活性を与えることが示唆されたこと等の成果が得られている。また、時間・空間分解触媒構造反応計測のテーマでは、排ガス浄化触媒 Pt 担持 $Ce_2Zr_{20_x}$ 粒子 1 粒内部における Ce の酸化状態の分布を可視化することに成功した。

しかし、このような成果がどのように低炭素社会構築、二酸化炭素排出削減、省エネルギー技術開発、持続可能な社会の建設につながるかについて研究成果が明らかになっていない。そのため、成果としては一部達成したと評価した。

③ 研究の成果

- ・これまでの研究成果により判明した事実や開発した技術等に先進性・優位性がある
(■ある ・ □ない)
- ・ブレークスルーと呼べるような特筆すべき研究成果がある
(□創出された ・ ■創出されなかった)
- ・当初の目的の他に得られた成果がある (□ある ・ ■ない)

詳細な触媒構造の時間解析と触媒作用との相関性についての研究は先進性がある。*in situ* 時間分解 XAFS の成功は計測という観点では大きなブレークスルーで高く評価できる。

ただし、いろいろな手法で触媒反応ダイナミクスを追跡する研究が多く行われており、研究代表者がこのことについて触れていないことには強い違和感を覚える。分子レベルで機能触媒を設計する指針の確立に関しても同様であり、表面を機能性分子・錯体で修飾する試みは他でも数多く行われており、酵素をモデルとしたものも少なくない。また、研究課題名（低炭素社会基盤技術構築・・・）に相応する触媒反応を見あたらない。このことは中間評価でも指定されていたが、プロジェクト終了でも明確になっていいいるのは残念である。今後、優れた触媒、プロセスの開発に向けて努力を期待する。

SPring-8 と共に、KB ミラー集光顕微 XAFS 法を用いた実触媒粒子の構造解明において、1 粒における Ni 触媒の酸化鉄状態の違いを捉えた点は、評価される。

④ 研究成果の効果

- ・研究成果は、関連する研究分野への波及効果がある
(■見込まれる ・ □見込まれない)
- ・社会的・経済的な課題の解決への波及効果がある
(■見込まれる ・ □見込まれない)

触媒構造の解析、機構解明の観点からは、既に見出されている触媒反応・作用の正確な理解のための寄与が期待できる。機能性触媒開発は他でも多く行われているが、XAFS による解析と組み合わせた研究は本研究課題の特徴の一つであり、関連する分野の進展に寄与することが見込まれる。また、触媒構造の解析、機構解明の観点からは触媒化学の発展への寄与が期待できる。

本研究課題はリーン物質変換を目指した触媒機能の開発が第一目的であるので、貢献が期待できるが、研究対象の反応系において、それぞれの可能性を示した段階と思われる所以、プロセス化を含めた今後のことより詳細な検討に期待したい。

SPring-8 の共同研究者と進めている計測技術は、現時点において世界最高レベルを保持しており、固体触媒に内在する現象をミクロな視点から明らかにする技術は確立している。関係者にその技術を波及させ、関連する研究分野の進展に寄与できるようになることが期待される。

ただし、本研究の成果は社会的、経済的課題の解決へ向けての直接的な貢献につながりにくいと思われる。

⑤ 研究実施マネジメントの状況

- ・適切なマネジメントが（□行われた　・　■行われなかつた）

ジャーナルに多数の論文を報告しており、基礎的研究の成果は挙がっているので、基礎研究に関しては、マネジメント適切に行われているが。しかし、研究に集中した研究員配置も理解できるが、大きな目標である「低炭素社会基盤技術構築」に向けた検討ができるように適切なアドバイザを探す努力はしてほしかった。

雑誌論文 26 (査読有 19、査読なし 6、査読中 1)、会議論文 70 (専門家向け 69、一般向け 1)、図書 4 であり、研究内容は適切に公表されている。また、毎年国民との科学・技術対話は毎年行われており、また、中高生向けの出前講義を行っており適切に実施されている。