

## 平成30年度実施方針

材料・ナノテクノロジー部

1. 件名：（大項目）有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発

2. 根拠法

国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構法第十五条第一号ニ及び第二号

3. 背景及び目的・目標

化学産業は我が国の一大産業であり、高い国際競争力を誇る製品を多数生み出している。一方で、同産業は化石資源を大量に消費し、二酸化炭素（CO<sub>2</sub>）排出量も多い。地球温暖化が懸念され、輸入に頼る石油の価格上昇や枯渇リスクに直面する中、化学品製造の革新的イノベーションの実現により、こうした課題を乗り越えていくことが急務となっている。

本プロジェクトは、エネルギー多消費の既存の有機ケイ素原料の製造プロセスに代わる新たな革新的省エネプロセスと高機能な有機ケイ素部材の製造プロセスを実現するための触媒技術及び触媒プロセス技術を開発するものであり、有機ケイ素工業のエネルギー制約を克服するためには、不可欠な技術開発である。さらには、本技術の確立は、我が国の有機ケイ素工業の国際的競争力の強化につながるものである。

また、有機ケイ素工業においてシリコーンの硬化や有機ケイ素化合物の製造に広く用いられるヒドロシリル化触媒は、古くから利用されているPt触媒であり、使用量が微量ではあるものの、高価である、供給不安がある、用途によっては回収が困難である、残存による製品性能が低下する、等の問題があり、これを代替する触媒の開発が求められている。加えて、有機ケイ素工業の主製品であるシリコーンは、安定性、耐候・耐熱性、透明性といった特性から、有機ポリマー部材に比べて高価であるにもかかわらず広い産業分野で使用されているが、より性能を向上させることが求められており、これには構造制御やコンタミの防止が重要な課題である。さらに、特定の構造を有する有機ケイ素部材は、その製造工程で大量の無機物が排出され、環境面・コスト面で問題があるため、このような問題の無い製造プロセスが求められている。

以上のように、有機ケイ素工業がエネルギー面、コスト面等の問題を解決し、高機能な有機ケイ素部材を安定的かつ安価に提供するための革新的製造プロセスの確立が求められている。

本プロジェクトでは、有機ケイ素に係る新たな触媒技術及び触媒プロセス技術を開発することにより、上述した課題を解決することを目的とする。これにより、有機ケイ素原料製造プロセスを確立し、大幅な省エネルギー化を実現させる。また、有機ケイ素部材の製造コストの低減と性能の向上を図り、その市場を拡大させるとともに、我が国の産業競争力を強化させる。

具体的には、委託事業として以下の項目を実施する。

#### 研究開発項目①「砂からの有機ケイ素原料製造プロセス技術開発」

次の内容について研究開発を実施する。

- (1) 金属ケイ素を経由しないQ単位構造中間原料製造法の開発
- (2) Q単位構造中間原料からの有機ケイ素原料製造技術の開発
- (3) 砂からQ単位構造を基本構造とするビルディングブロック型の有機ケイ素原料製造法の開発
- (4) 高活性ケイ素化学種を経由した有機ケイ素原料製造法の開発（平成28年度で終了）
- (5) その他の反応

##### 【最終目標（平成33年度末）】

1kgスケールでケイ砂の反応率50%、及び選択率50%を達成する。（1）については、反応率70%及び選択率70%を達成する。また、触媒反応の実用化に向けて必要となるプロセス要素技術を特定し、その工業的实施可能性を1kgスケールで検証する。

##### 【中間目標（平成26年度末）】

複数の反応経路とそれぞれの反応における触媒の中心元素の種類や配位子構造等について複数の候補を選定する。

##### 【中間目標（平成28年度末）】

ケイ砂を原料に用いる際の技術課題を抽出する。  
反応経路と触媒について有望な組合せを絞り込む。

##### 【中間目標（平成31年度末）】

ケイ砂の反応率50%、有機ケイ素原料の選択率50%を達成すると見込まれる反応経路と触媒を選定し、温度や反応媒体等の最適な反応条件について指標を得る。（1）については、平成31年度前半までに反応率70%及び選択率70%を達成すると見込まれる反応経路と触媒を選定し、温度や反応媒体等の最適な反応条件について指標を得る。  
原料に用いるケイ砂の処理方法等を選定する。

#### 研究開発項目②「有機ケイ素原料からの高機能有機ケイ素部材製造プロセス技術開発」

次の内容について研究開発を実施する。

- (1) ケイ素－炭素結合形成技術
- (2) ケイ素－酸素結合形成技術
- (3) ケイ素－ケイ素結合形成技術
- (4) 触媒固定化基盤技術

##### 【最終目標（平成33年度末）】

1kgスケールで有機ケイ素原料の反応率80%、有機ケイ素部材の選択率80%を達成する。  
有機ケイ素部材中の残留触媒の低減を達成する。

有機ケイ素部材の構造制御技術を確立する。

【中間目標（平成26年度末）】

複数の高機能有機ケイ素部材を想定した各種反応に用いられる触媒の活性中心元素や配位子構造等について複数の候補を選定する。

【中間目標（平成28年度末）】

反応経路と触媒について有望な組合せを絞り込む。

【中間目標（平成31年度末）】

有機ケイ素原料の反応率80%、有機ケイ素部材の選択率80%を達成すると見込まれる反応経路と触媒を選定し、温度や反応媒体等の最適な反応条件について指標を得る。

#### 4. 実施内容及び進捗（達成）状況

プロジェクトマネージャーにNEDO環境部 佐藤秀治主査を任命して、プロジェクトの進行全体の企画・管理を担当させ、プロジェクトに求められる技術的成果及び政策的効果を最大化させた。

国立研究開発法人産業技術総合研究所・触媒化学融合研究センターの佐藤一彦研究センター長をプロジェクトリーダーとし、以下の研究開発を実施した。なお、平成25年度までは経済産業省の執行の下で事業を実施した。

##### 4. 1 平成29年度事業内容

本事業では、安定的に高機能な有機ケイ素部材を安価に提供するための革新的製造プロセスの確立を目的に、必要となる触媒及び触媒プロセスの技術開発を実施している。

平成28年10月に開催した中間評価において、本事業は高付加価値な有機ケイ素部材の製造方法の確立に向け意欲的な開発を行っており、製造工程の省エネ化・低コスト化や産業の国際競争力強化に貢献する産業戦略上重要なテーマであると高く評価されている。

研究開発項目①「砂からの有機ケイ素原料製造プロセス技術開発」

（実施体制：産業技術総合研究所、群馬大学、早稲田大学、（再委託先）大阪大学、（共同実施先）コルコート株式会社）

##### （1）金属ケイ素を経由しないQ単位構造中間原料製造法の開発

シリカ（ $\text{SiO}_2$ ）からテトラアルコキシシランへの変換反応として、変換が難しいもののコストメリットが見込まれるケイ素源である難反応性の $\text{SiO}_2$ について、適切な前処理プロセスを検討し、その基盤技術を見出した。また、金属ケイ素を経由する現行製造法に対する本検討プロセスの省エネルギー化及び $\text{CO}_2$ 排出低減効果を明確に数値化した。さらに、 $\text{SiO}_2$ からテトラアルコキシシランへの変換反応の実用化のためのターゲットとなるテトラアルコキシシラン種を絞り込み、反応の段階的なスケールアップを検討することにより、パイロットプラ

ントの基本的な設計指針を確立した。

#### (2) Q単位構造中間原料からの有機ケイ素原料製造技術の開発

Q単位構造中間原料から固体触媒及び均一系触媒を用いる有機ケイ素原料（アルキルシラン類及びヒドロシラン類）製造方法の開発を強化した。固体触媒を用いた検討については、その種類・反応条件の検討により、有望な反応経路である流通型反応器を用いた検討において、アルコキシシランを原料として、Si-H結合を持つ化合物を経由してSi-CH<sub>3</sub>を持つ化合物に変換可能な触媒及び条件を見出した。均一系触媒においても水素ガスを水素源とするヒドロシラン類の製造法について触媒効率の向上を目指し、触媒構造及び反応形式の改良、反応条件の検討等について優先的に取り組み、更なる検討を行う価値のある触媒候補の絞り込みを行った。また、脱炭酸反応を利用した有機シラン製造法について、触媒・反応条件等を精査し、反応効率の向上及び基質適用範囲の検討を行った。

#### (3) 砂からQ単位構造を基本構造とするビルディングブロック型の有機ケイ素原料製造法の開発

天然資源等からのビルディングブロック切り出し・形成のための反応経路、触媒及び反応条件を引き続き検討し、有望な原料及び反応経路を探索した。

しかし、いずれも実用化に向けてさらに時間がかかることが予想されるため、実施者とNEDOで相談の上、平成30年度は実施しない旨、関係者間で合意に達した。

#### (4) 高活性ケイ素化学種を経由した有機ケイ素原料製造法の開発

本検討は平成28年度に終了しており平成29年から31年度は実施しない。

#### (5) その他の反応

有機ケイ素原料製造方法について、新規の反応や製造方法の文献調査を行った。

### 研究開発項目②「有機ケイ素原料からの高機能有機ケイ素部材製造プロセス技術開発」

（実施体制：産業技術総合研究所、大阪市立大学、群馬大学、早稲田大学、関西大学、（再委託先）北里大学、（共同実施先）東レ・ダウコーニング株式会社（平成29年5月31日まで）、昭和電工株式会社）

#### (1) ケイ素-炭素結合形成技術

工業的に重要であるが白金触媒の適用が難しいアリル化合物や反応性置換基を有するオレフィン類のヒドロシランとの組み合わせによるヒドロシリル化について有効な触媒の組合せを絞り込み、スケールアップを含めた実用化に向けた検討として、グラムスケールで選択性80%以上を達成した。また、白金触媒代替としての鉄錯体及び金属微粒子触媒の開発を行い、活性

が世界最高性能の鉄触媒開発に成功するとともに、触媒活性向上のため、触媒置換基の最適化による高活性化のための検討を行った。

#### (2) ケイ素－酸素結合形成技術

シラノール類、反応性官能基を有するシロキサン類等のビルディングブロック製造法の実用化に向け、反応条件最適化、プロセスの改良、スケールアップの検討を行った。新たなビルディングブロックの開発として、クロスカップリング反応と精密重合反応については、触媒、溶媒、反応温度について探索やプロセスの改良を行い、構造が制御されたシロキサン化合物や高反応性置換基を有する種々のシロキサン系ビルディングブロックを合成することができた。また、本反応によって得られた重合物の分子量や熱的な物性を明らかにすることで、構造が明確に制御されたオリゴシロキサンやポリシロキサンに関し、構造と物性の相関に関する基礎的な知見の蓄積を行い、高性能又は新規な物性・機能を有する部材開発の検討を開始した。

#### (3) ケイ素－ケイ素結合形成技術

ジシラン製造技術について、収率、選択性及び触媒寿命を向上させるため、平成28年度に引き続き担持金属種及び触媒担体の最適化並びに触媒調製方法の最適化を検討した。

ジシラン製造技術のうち、ジシランの濃縮方法については、検討を行った結果、十分なジシランの濃縮が見込めない上、濃縮工程が含まれることで生産量も低下することが判明したため、平成30年度以降は実施しないこととした。

#### (4) 触媒固定化基盤技術

ヒドロシリル化用鉄錯体触媒について、担体の種類や固定化条件等の固定化手法の検討を行い、有望な固定化手法を見出した。

#### 調査項目 「有機ケイ素に関する技術動向と市場の調査」

有機ケイ素原料、及び有機ケイ素部材の技術動向及び市場調査を行うとともに、ユーザーが必要とする高機能有機ケイ素部材の種類、性質、及びその開発の方向性を調査した。

(実施体制：株式会社三菱ケミカルリサーチ)

#### 4. 2 実績推移

	24年度	25年度	26年度	27年度	28年度	29年度
実績額推移 一般会計 (百万円)	200 (経済産業省)	200 (経済産業省)	—	—	—	—
需給会計 (百万円)	—	—	210	619	331	215
特許出願 件数 (件)	1	8	18	25	20	19
論文発表数 (件)	0	0	3	8	12	5
学会・フォーラム等 (件)	4	11	31	38	22	34

ただし、平成24、25年度の実績額は経済産業省直轄事業。

平成29年度実績は年度末見込み。

#### 5. 事業内容

プロジェクトマネージャーにNEDO材料・ナノテクノロジー部 山田 浩主査を任命して、プロジェクトの進行全体の企画・管理を担当させ、プロジェクトに求められる技術的成果及び政策的効果を最大化させる。

また、国立研究開発法人産業技術総合研究所・触媒化学融合研究センターの佐藤一彦研究センター長をプロジェクトリーダーとして、以下の研究開発を実施する。

##### 5. 1 平成30年度事業内容

研究開発項目①「砂からの有機ケイ素原料製造プロセス技術開発」

(実施体制：産業技術総合研究所、(再委託先) 大阪大学、(共同実施先) コルコート株式会社)

##### (1) 金属ケイ素を経由しないQ単位構造中間原料製造法の開発

シリカ ( $\text{SiO}_2$ ) からテトラアルコキシシランを高効率に合成するための反応促進添加剤と反応条件や用いる触媒等の組み合わせについて有望な候補を選定する。また、スケールアップ検討で得られた実験結果をプロセスシミュレーションに反映し、実用化に向けて製造コスト低減に有効な構成要素の絞り込みを行う。

(2) Q単位構造中間原料からの有機ケイ素原料製造技術の開発

砂からの有機ケイ素原料製造プロセス技術として、Q単位構造中間原料から固体触媒及び均一系触媒を用いる有機ケイ素原料（アルキルシラン類及びヒドロシラン類）製造方法の開発を強化する。いずれの触媒でも、アルコキシシラン化合物類を用いた検討によって得られた知見を基に、Q単位構造中間原料（テトラメトキシシラン等）を出発原料として、さらに高効率に有機ケイ素原料を製造するための触媒種及び反応条件の検討を行う。特に、均一系触媒については、遷移金属ヒドリド触媒などを用いた検討を行い、モデル化合物を用いた添加剤効果の解明や反応条件の検討を通じて、アルコキシシランの水素化反応によるヒドロシラン類の製造法について触媒効率の向上を目指すことで、触媒構造及び反応形式の改良、反応条件の検討等を継続する。また、安価な水素源等を利用したアルコキシシラン等の水素化にも取り組み、本手法の有用性を評価する。さらに、水素ガスより取扱いやすい新規ヒドリド錯体などの発生法と固体表面へ担持されたヒドリド錯体などの利用も検討する。

(3) 砂からQ単位構造を基本構造とするビルディングブロック型の有機ケイ素原料製造法の開発

研究開発項目②(2)ケイ素-酸素結合形成技術の検討に注力するため、平成30年度は実施しない。

(4) 高活性ケイ素化学種を経由した有機ケイ素原料製造法の開発

本検討は平成28年度に終了しており平成29年から31年度は実施しない。

(5) その他の反応

有機ケイ素関連の新規な反応や製造方法について、文献調査などを実施する。

研究開発項目②「有機ケイ素原料からの高機能有機ケイ素部材製造プロセス技術開発」

(実施体制：産業技術総合研究所、大阪市立大学、群馬大学、早稲田大学、関西大学、(再委託先)北里大学、(共同実施先)昭和電工株式会社)

(1) ケイ素-炭素結合形成技術

工業的に重要性が高く、かつ白金触媒の適用が難しいアリル化合物及び配位性、反応性置換基を有するオレフィン類とヒドロシランとの組合せについて、引き続き触媒の改良や反応条件の最適化に重点的に取り組み、実用化に向けた検討を進め、課題を抽出する。

また、白金触媒の代替を目指した鉄等の卑金属触媒の開発に関しては、引き続き工業的に重要な基質の反応を中心に、触媒の更なる高活性化を目指した検討を進める。

鉄微粒子と他の金属微粒子を混ぜ合わせた触媒系について、実用化に向けた高活性微粒子触媒としての適用範囲を拡大し、実用面における高機能化を図る。また、金属微粒子の機器分析

による解析をさらに進めることによって、金属微粒子の構造等が触媒活性に与える影響を検討する。また、ジシランやヒドロシランなどを原料に用いたケイ素化合物の合成法の開発を引き続き継続するとともに、触媒リサイクルの検討を進める。

#### (2) ケイ素-酸素結合形成技術

シラノール合成法については、シラノール類、反応性官能基を有するシロキサン類等のビルディングブロック製造法の実用化に向け、引き続き、反応条件の最適化、プロセスの改良、スケールアップの検討等を行うとともに、新たなビルディングブロックの開発や材料としての可能性を調査する。

クロスカップリング反応、精密重合反応、多段階型クロスカップリング反応等については、引き続き触媒及びプロセスの改良を行うとともに、上記ビルディングブロックに適用し、構造が明確に制御されたオリゴシロキサンやポリシロキサンを開発する。さらに、スケールアップの検討を行い、合成したオリゴシロキサンやポリシロキサンの種々物性等の分析を開始する。これにより、シロキサン骨格の構造と物性の相関に関する基礎的な知見の蓄積を行うとともに、従来品を凌駕する高い性能又は新たな物性・機能を有する部材開発の指針を得る。

非対称アルコキシシランの合成について、利用方法の探索、工業化への課題の整理、及びその解決に向けた検討を行う。

平成29年度までに合成したオリゴシロキサンを利用した規則性構造ポリシロキサンに関し、合成経路や反応条件の検討を継続するとともに、スケールアップの検討を行う。また、ランダム共重合体に対する規則性重合体の優位な点を明確にするため、物性比較方法の検討に着手する。

#### (3) ケイ素-ケイ素結合形成技術

ジシラン製造技術について、収率、選択性及び触媒寿命を向上させるため、担持金属種及び触媒担体の最適化並びに触媒調製方法、反応条件の最適化を継続して検討する。また、触媒高性能化検討の中でも、特にジシラン収率向上に注力した検討を行う。

#### (4) 触媒固定化基盤技術

ヒドロシル化用鉄錯体触媒等による、均一系触媒と同等程度の触媒活性を示す固定化触媒の開発を目指し、引き続き担体の種類、固定化手法等の検討を行う。また、モデル反応を用いて繰り返し試験を行い、様々な反応条件において固定化触媒の有効性について検証を行う。

### 5. 2 平成30年度事業規模

委託事業

需給勘定

190百万円（継続）

※事業規模については、変動があり得る。



## 6. その他重要事項

### (1) 評価の方法

NEDOは、技術的及び産業技術政策的観点から、研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義及び将来への波及効果等について、技術評価実施規程に基づき、プロジェクト評価を実施する。外部有識者による中間評価を平成31年度に実施する。

### (2) 運営・管理

NEDOは、主としてプロジェクトリーダーを通して研究開発実施者と緊密に連携し、研究開発の進捗状況を把握する。具体的には、プロジェクトリーダー、委託先機関等からのヒアリングにより、開発目標に対する成果状況などの報告を受け、運営管理に反映する。また、優れた研究成果を上げるために、研究加速についても弾力的に対処するなど予算の効果的配分に努める。さらに、外部有識者で構成する技術検討委員会を組織し、定期的に技術評価を受け、目標達成の見通しを常に把握することに努める。

### (3) 複数年度契約の実施

本事業は、平成28年度までの契約を期間延長し、平成31年度までの複数年度契約を行っている。

### (4) 知財マネジメントに係る運用

「NEDOプロジェクトにおける知財マネジメント基本方針」に従ってプロジェクトを実施する。

## 7. スケジュール

平成30年7月～平成31年2月・・・技術検討委員会（予定）

## 8. 実施方針の改定履歴

平成30年2月、制定。

平成30年5月、NEDO担当部署の変更及びプロジェクトマネージャー変更に伴う改訂。

(別紙) 平成30年度「有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発」実施体制図

**有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発 体制図**

