

平成31年度実施方針

材料・ナノテクノロジー部

1. 件名：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（CO₂）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、耐侯・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、その工業的実施可能性を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30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（ 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した。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て、実用化に向けて製造コスト低減に有効な構成要素を絞り込み、開発した製造方法が現行の製造方法よりも低コストなプロセスであることを明確化した。

(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、流通型反応器を用いた検討において、触媒担体の調整方法の工夫により、アルコキシシランをSi-CH₃を持つ化合物に変換する効率を向上させることに成功した。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、添加物の効果を中心に反応条件の検討に取り組み、反応効率化を可能とする触媒候補及び反応条件の絞り込みを行った。また、ボラン化合物を水素及び有機源として利用したヒドロシラン及び有機シラン製造法について、触媒・反応条件等を精査して、有用な触媒及び反応条件を見出した。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を触媒として利用した取り組みでは、本手法の有用性を評価した。

(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

本検討は、実用化に向けて時間がかかることが予想されたことから、平成30年度は実施していない。

(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み合わせを絞り込み、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90%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した。さらに触媒構造の改良を重ね、実用化を見据えて空気下での安定性向上、再利用性付与、温度応答性付与など、触媒の高機能化を実現した。

(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方法の実用化に向け、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い、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した。

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、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合成することができた。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て、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った。さらに、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と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ことを目的として、合成したオリゴシロキサンやポリシロキサンの熱的物性等の分析を開始した。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った。

(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29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。

触媒寿命向上の観点で、触媒再生方法の検討に取り組み、吸着シラン脱離後空気焼成することで触媒が再生されることを見出した。

また、ゼオライト担体にAl成分を前担持することにより、ジシラン収率として最大20%の収率を達成し、触媒の寿命も改善されることを見出した。さらに、大量触媒調製方法を確立するとともに、数10kgスケールで調製した触媒の評価を実施して、ベンチ品と同等の性能であることを確認した。

(4) 触媒固定化基盤技術

コバルト錯体を固体に担持することにより、オレフィンのヒドロシリル化反応に、高い触媒活性が発現する新しい現象を発見した。

4. 2 実績推移

	24年度	25年度	26年度	27年度	28年度	29年度	30年度
実績額推移							
一般会計(百万円)	200	200	—	—	—	—	—
需給会計(百万円)	(経済産業省) —	(経済産業省) —	210	619	331	215	190
特許出願件数(件)	1	8	18	25	20	53	12
論文発表数(件)	0	0	3	8	12	9	4
学会・フォーラム等(件)	4	11	31	38	22	49	25

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30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31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(SiO₂)からテトラアルコキシシランを高効率に合成する反応について、プロセス全体の最適化検討を行い、変換の難易度が高い石英質を含むケイ砂を原料とする反応について、実用化を前提とした反応条件と触媒種の絞り込みを行う。また、プロセスシミュレーション等で得られた知見を、実際の製造プロセス設計に反映させて、反応率70%及び選択率70%を達成すると見込まれる温度や、反応媒体等の最適な反応条件について指標を得る。

(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）製造方法の開発を引き続き強化する。固体触媒を用いた検討では、Q単位構造中間原料（テトラメトキシシラン等）を出発原料とした場合の反応条件を精査して、有望な触媒種及び反応経路を選定する。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において、新たに触媒構造設計を施し、反応条件の検討等を継続することで触媒効率の向上を目指す。その際、反応形式の改良にも取り組む。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では実用化を見据え、反応条件の検討及びスケールアップ等に取り組む。新規ヒドリド錯体の発生活や固体表面に担持されたヒドリド錯体の探索では有用な候補を見つけれなかったため、新たに多核ヒドリド錯体を利用した新規触媒構造の設計に着手する。

(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31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

研究開発項目①(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の検討に注力するため、平成31年度は実施しない。

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と同時に、実用化を見据えた取り扱い容易な触媒構造の探索にも着手する。

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、触媒再利用時における金属回収のさらなる効率化を図り、実用化触媒としての高機能化を図る。さらに、コスト削減を目的としたヒドロシリル化触媒の汎用金属触媒（コバルト等）への展開を図る。

以上に加え、分子状酸素を酸化剤とする酸化的カップリング法を利用することで、ヒドロシランとジエン等との反応による有用なケイ素化合物合成に関して有効な反応経路を見出すとともに、実用化に耐える高活性な触媒系を選定し、最適な反応条件についての指標を得る。

（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、他の化合物との複合化を検討し、材料化への展開を検討する。

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、官能基変換反応等については、引き続き、触媒及びプロセスの改良を行い、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の開発を行う。また、合成経路や反応条件の検討を継続し、上述のビルディングブロックや規則性構造を有するオリゴシロキサンを組み込んだ、含規則性構造ポリシロキサンの選択性向上を図る。さらに、スケールアップの検討を行い、規則性重合体の優位性を明確にするため、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行い、従来のランダム共重合体の物性と比較し評価する。引き続き、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を蓄積し、従来品を凌駕する高い性能または新たな物性・機能を有する部材開発の指針を得る。

（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、平成30年度に引き続き、収率、選択性及び触媒寿命の向上の検討を行う。さらに、実機試験を想定した反応データ取得を行うとともに、工業的生産を想定した触媒改良を必要に応じて行うことで実用化に向けた検討を加速する。

（４）触媒固定化基盤技術

ヒドロシリ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、固定化触媒のリサイクルの検討とともに、工業化を見据えた反応系において固定化触媒の適用可能性について精査する。

5. 2 平成31年度事業規模

需給勘定

※事業規模については、変動があり得る。

委託事業

150百万円（継続）

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実施している。

(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31年7月～平成32年2月…技術検討委員会（予定）

8. 実施方針の改定履歴

平成31年3月、制定。

(別紙) 平成31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

