

## 2020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（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（2016年度で終了）
- (5) その他の反応

##### 【最終目標（2021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（2014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（2016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（2019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、2019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（2021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（2014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（2016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（2019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、2013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 2019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。

2019年8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、(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<sub>2</sub>)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対する実用化を前提とした反応条件と触媒種の絞り込みを行った。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、2019年度前半に反応率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の指標を得て中間目標を達成した。さらに、原料に用いるケイ砂の処理方法の選定と、実用化に向けて必要となるプロセス要素技術の特定も実施した。

## (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

砂からの有機ケイ素原料製造技術として、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）製造技術の開発を引き続き実施した。固体触媒では、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、有望な触媒種及び反応経路を選定した。均一系触媒では、遷移金属ヒドリド触媒を用いた検討において、新たな触媒構造設計と反応条件の検討を継続することによる触媒効率向上の検討を行い、遷移金属触媒によるラジカル的な結合開裂を伴う新たな反応形式を見出した。さらに、多核ヒドリド錯体を利用した新規触媒構造の設計も実施した。

## (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、実用化に時間がかかることと、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、2018年度と2019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2016年度に終了しており2019年度は実施していない。

## (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に注力するため、2019年度は実施していない。

## 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、公立大学法人大阪(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白金触媒の適用が難しいアリル化合物や、配位性と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よるヒドロシリル化については、触媒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引き続き進めた。白金触媒代替を目指した鉄等の卑金属触媒の開発については、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、開始剤が不要で取扱いも容易な触媒を新たに見出した。鉄微粒子と他の金属微粒子を混合した触媒系については、外部刺激応答性の付与等の高機能化、触媒再利用時における金属回収のさらなる効率化の達成、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)への展開など、実用化に向けた高活性微粒子触媒とし

での適用範囲を拡大した。さらに、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したヒドロシランとジエン等との反応によるケイ素化合物合成については、実用化に耐えうる高活性な触媒系を選定して、最適な反応条件についての指標を得た。

#### (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、シラノール類と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、反応条件の最適化、プロセス改良、スケールアップ検討等を行うとともに、ユーザーへのサンプル提供等を通して部材化への道筋を明確化した。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、官能基変換反応等については、触媒及びプロセスの改良を行い、構造が高度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した。さらに、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を選択的に合成できる技術の確立と、最終目標の実現に向けたスケールアップ検討を行い、合成したオリゴシロキサンやポリシロキサンの物性等の分析により、従来のランダム共重合体の物性と比較して耐熱性向上の効果を確認した。

#### (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、触媒寿命の向上を行った。さらに、生産用実機試験を想定した反応データ取得を行うとともに、最終的な工業生産を想定した触媒改良を行うことで実用化に向けた検討を開始した。

#### (4) 触媒固定化基盤技術

ヒドロシラン化反応用の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実施して、固定化触媒のリサイクル検討と、工業化を想定した反応系における固定化触媒の適用可能性について検証した。

### 4. 2 実績推移

	2012年度	2013年度	2014年度	2015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	620
特許出願件数 (件)	1	8	18	25
論文発表数 (件)	0	0	3	4
学会・フォーラム等 (件)	4	11	28	48

	2016年度	2017年度	2018年度	2019年度
実績額推移				
一般会計（百万円）	—	—	—	—
需給会計（百万円）	331	215	190	202
特許出願件数（件）	42	32	31	22
論文発表数（件）	15	7	8	4
学会・フォーラム等（件）	39	48	30	38

ただし、2012、2013年度の実績額は経済産業省直轄事業。

2019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 2020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反応について、プロセスの実用性検証を深化させ、未反応シリカと生成物の分離方法等の検討を含めたプロセスの連続化の検討を行う。また、1kgスケールでの工業的実施可能性の検証が可能な反応装置を産業技術総合研究所が共同実施先と連携して導入し、稼働試験により得られた目的物の精製方法を検討する。

#### （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技術として、アルコキシシランやアシロキシシラン等のQ単位原料を出発原料としたヒドロシラン（ $\text{Si-H}$ 結合を有する化合物）やアルキルシラン（ $\text{Si-C}$ 結合を有する化合物）等の合成に対して、触媒回転数のさらなる向上と、均一系及び不均一系の両面から新触媒の発見と新反応条件の発見に向けたスクリーニングを継続して重点的

に行い、有望な反応経路のスケールアップを実施する。さらに、コストや工業的な実現可能性などを考慮し、ヒドロシランやアルキルシラン合成の触媒と反応剤を安価で省エネルギーな手段で再生する実用化プロセス技術検証の検討も行う。

(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、2018年度から2020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2016年度に終了しており2020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、2019年度と2020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、公立大学法人大阪(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白金触媒の適用が難しいアリル化合物や、配位性と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よるヒドロシリル化について、これまでに選定した触媒及び反応条件の改良をさらに重ねて、反応のスケールアップ検討を行う。白金触媒代替を目指した鉄等の卑金属触媒の開発については、実用化に向けたさらなる検討として、スケールアップ時に課題となる微量副生成物を反応選択性の向上により抑制するとともに、目的生成物のさらなる収率向上を実現する触媒と反応条件の検討を行う。また、触媒と反応剤に対する耐湿性評価も引き続き行い、ハンドリング性の向上を行う。鉄微粒子と他の金属微粒子を混合した触媒系については、スケールアップに適した金属微粒子触媒とヒドロシリル化反応条件の改良を行うとともに、微粒子触媒合成におけるスケールアップ手法、触媒リサイクル法の確立、機器分析による構造解析、コバルト等の汎用金属を用いたヒドロシリル化反応の検討を引き続き行うことにより、金属微粒子触媒系の実用面における有効性を示す。さらに、反応生成物への残留触媒を低減する検討と、含窒素含ケイ素化合物の合成プロセスにおける触媒量の低減化や反応のスケールアップ検討を行う。なお、1kgスケール検証に向けた実験は、産業技術総合研究所と委託先大学が連携して行う。

## (2) ケイ素－酸素結合形成技術

シラノール合成法、ポリシロキサン精密合成法については、1 kg スケールで反応率80%及び選択率80%を実現する反応条件を段階的に確立する。各段階で得られた材料は、新機能を有する部材創製に向けた物性評価を重点的に行い、製造コストの概算値や量産化に必要な触媒性能など、従来材料に対する優位性を示す。ラダーシロキサンやダブルデッカーシロキサンについては、ユーザーが実用化検討として物性評価を行うために必要な量を特定しながらスケールアップ検討を行い、ユーザーへのサンプル提供を通して材料としての有用性を示す。規則性構造ポリシロキサン合成については、直鎖ポリシロキサン構造とQ単位構造を含んだオリゴシロキサン合成における反応率と選択率の向上を検討すると共に、合成したオリゴシロキサンの重縮合による三次元構造ポリシロキサンの合成と物性値評価を進める。クロスカップリング反応、シロキサン結合を連続的に伸長させるワンポット反応等については、より分子量の大きなシロキサン化合物を効率的に合成するために、プロセス改良等を引き続き検討する。なお、1 kg スケール検証に向けた実験は、産業技術総合研究所と委託先大学が連携して行う。

## (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は、産業技術総合研究所が共同実施先と連携してプラント設計に必要な技術検証を行い、設計指針を明確化する。また、製造コストの概算値や量産化に必要な触媒性能の目標値などを提示するための調査と検討を進める。さらに、触媒あたりの生産性の向上と触媒寿命の改善を両立させる反応条件の最適化を検討するとともに、触媒担体、触媒組成、調製方法の検討も行う。

## (4) 触媒固定化基盤技術

ヒドロシリル化反応用固定化触媒について、これまでの検討で得られた錯体触媒部位、錯体触媒と担持体を接合するアンカー部位、担持体部位の組み合わせの中から最適のものを選択して、固定化触媒の回収方法、リサイクル使用に対する耐久性の最適化を行う。

## 5. 2 2020年度事業規模

### 委託事業

需給勘定

350百万円（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。



## (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、2019年度までの契約を期間延長し、2021年度までの複数年度契約を実施する。

## (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

2020年7月～2021年2月…技術検討委員会（予定）

## 8. 実施方針の改定履歴

(1) 2020年2月、制定

**有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発 体制図**

