

平成27年度実施方針

環境部

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1項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、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」

【最終目標(平成33年度末)】

1kgスケールでケイ砂の反応率50%、有機ケイ素原料の選択率50%を達成する。
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。
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」

【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

独立行政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26年度までの事業内容

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26年9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」について、金属ケイ素を経由しないQ単位構造（ケイ素原子に酸素原子が4つ結合している構造）中間原料製造法の開発に関しては、炭酸ジアルキルを経由するアルコキシシランの製造方法について、触媒の種類と量、二酸化炭素の圧力、脱水剤の種類と量、反応温度、反応媒体等の様々な反応条件を検討し、本反応を効率的に進行させるための必須成分を明らかにするとともに、テトラメトキシシランを収率80%以上（SiO₂基準）で製造することができる条件を見出した。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関しては、水素を還元剤としたヒドロシラン合成において、一部の基質に対して有効な触媒を見出すとともに、アルキルシランやアリールシランの選択的な合成に有機マンガン錯体が利用できることを明らかにした。また、高活性ケイ素化学種を利用する方法については、高活性ケイ素化学種を発生させ、反応を検討するための装置を設計・作製し、各種有機基質等との反応を行うための条件探索を行った。また、その他の反応として、各種アルキル金属種によるSi-O結合切断反応の理論計算による検討や種々の反応の技術調査を実施した。（実施体制：産業技術総合研究所、群馬大学）

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」について、ケイ素-炭素結合形成技術のうちヒドロシリル化反応用触媒に関しては、中心元素の種類や配位子構造及びヒドロシランやオレフィンの構造が反応に与える影響を検討し、鉄やニッケルの錯体触媒、多座配位子触媒や金属微粒子触媒で有望な候補を見出した。新規なケイ素-炭素結合形成技術に関しては、カップリング反応によりアリルシランやアリールシランを合成する反応について、錯体触媒の中心金属や配位子構造等、および温度・溶媒等の反応条件を検討し有効な触媒を見出した。ケイ素-酸素結合形成技術において、選択的にケイ素-酸素結合を形成できる反応の開発に関しては、不安定で中間原料としての利用が限定されていたシラノールを、無水条件で安定に合成する触媒反応を見出した。また、シラノールとヒドロシランとの脱水素縮合反応に有効な触媒を見出すと共にシラノールの酸触媒縮合過程の解明を行った。さらに、非対称ジ、トリ、テトラアルコキシシランやアシロキシシランの簡便かつ高選択的な触媒的合成法を見出した。クロスカップリング反応に関しては、ルイス酸触媒や遷移金属触媒等を用いた検討を行い、中心元素の種類や基質構造の影響、触媒量や反応媒体等の反応条件が触媒反応効率や選択性に与える影響を調べ、今後の検討指針を得た。ケイ素-ケイ素結合形成技術において、脱水素カップリング反応に関しては、気相反応装置を設計・作製し、触媒の種類、反応温度、反応基質濃度等を変

えた実験を行い、高次シランを無触媒条件に比べ高収率で得る触媒と反応条件を見出した。(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)

調査項目「有機ケイ素製造プロセスの技術動向及び有機ケイ素部材の開発ニーズに関する検討」として、本研究開発のより効果的な推進に活用できる情報を得ることを目的とし、有機ケイ素原料及び有機ケイ素部材の製造方法に関する技術動向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とその開発の方向性を調査した。(実施体制：株式会社三菱化学テクノリサーチ)

4. 2 実績推移

	24年度	25年度	26年度
実績額推移			
①一般会計（百万円）	200（経済産業省）	200（経済産業省）	—
②需給会計（百万円）	—	—	210
特許出願件数（件）	1	8	18
論文発表数（件）	0	0	3
学会・フォーラム等（件）	4	11	31

ただし、平成24、25年度の実績額は経済産業省直轄事業。

5. 事業内容

国立研究開発法人産業技術総合研究所・触媒化学研究融合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27年度委託事業内容

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」において、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に関しては、アルコールとSiO₂からアルコキシシランを製造する反応について、触媒の改良や各種反応条件等の検討を行うとともに、脱水剤の再生工程等についても検討を行い、さらにスケールアップ検討を開始し、現行プロセスや競合技術との比較を行ってプロセス全体の効率化のための課題を絞り込む。また、プロセス全体のシミュレーションについても検討する。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関しては、水素を還元剤として用いる反応等について錯体触媒や金属ナノ粒子触媒を用いた検討を継続するとともに、アルキル化反応等について固体触媒を用いた検討を新たに開始する。また、砂等のSiO₂原料の骨格構造を部分的に保持した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を今年度から開始し、原料の種類や触媒、反応条件等を検討する。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に関しては、各種有機基質等との反応検討を継続する。

その他、アルキル化反応等の新たな手法としては、プラズマ等の利用可能性について検討する。なお、それぞれの反応において、必要に応じ反応機構等に関し理論計算によるシミュレーション検討を行う。

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」において、ケイ素-炭素結合形成技術のうちヒドロシリル化反応用の触媒開発に関しては、触媒活性向上、触媒毒への耐性、難基質への対応等の観点で、それぞれの触媒の特性に合わせた反応系を定め、配位子構造、触媒前駆体構造、反応条件等を引き続き検討するとともに、工業化のための課題を抽出する。また、開発した均一系ヒドロシリル化触媒の固定化検討にも着手する。新規なケイ素-炭素結合形成技術に関しては、カップリング反応により有機ケイ素化合物を合成する反応について、微粒子触媒や錯体触媒を中心に金属の種類、配位子構造、前駆体の影響、反応条件等を検討する。微粒子触媒については詳細な分析を実施し、技術の理解を深める。ケイ素-酸素結合形成技術に関しては、シラノール合成法及び分析法の改良を進めて多種のシラノール類を原料として扱えるようにし、これらを用いたビルディングブロックやポリマーの合成反応を検討するとともに、工業化のための課題を抽出し、また、シラノールの縮合過程について引き続き検討する。また、非対称アルコキシシランを用いた構造制御法を検討する。クロスカップリング反応に関しては、ルイス酸触媒等を用いた検討を継続する他、原料としてアシロキシシランを用いた方法を新たに検討するとともに、工業化のための課題を抽出する。また、シリコーンの構造解析技術に関しては、各種スペクトル等による検討を継続する。ケイ素-ケイ素結合形成技術に関しては、脱水素カップリング反応による高次シランの選択的製造について、反応条件における触媒寿命評価を開始するとともに、触媒活性、選択性、触媒寿命の向上を目指し、触媒構造や反応条件について継続して検討するとともに、開発した錯体触媒の固定化検討を開始する。なお、それぞれの反応において、必要に応じ反応機構等に関し理論計算によるシミュレーション検討を行う。

5. 2 平成27年度事業規模（予定）

委託事業

需給勘定

619百万円（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、外部有識者による研究開発の中間評価を平成28年度に実施する。

(2) 研究開発の運営管理

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26年度の単年度契約を期間延長し、平成28年度までの複数年度契約を行う。

(4) 知財マネジメントにかかる運用

「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27年9月～平成28年3月・・・技術検討委員会（予定）

8. 実施方針の改定履歴

平成27年2月、制定。

平成27年5月、「平成27年度事業規模（予定）」の変更及びこれに伴う実施内容の追記、並びに産業技術総合研究所の共同実施先（昭和電工株式会社）の追加に伴う改訂。

平成27年8月、産業技術総合研究所の再委託先（大阪大学）及び共同実施先（コルコート株式会社及び東レ・ダウコーニング株式会社）の追加に伴う改訂。

平成28年2月、実施内容および予算の一部を平成28年度に後ろ倒しすることに伴う改定。

(別紙) 平成27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

