

# 大型工業技術開発制度(大型プロジェクト)における一酸化炭素等を原料とする基礎化学品の製造法(C<sub>1</sub>化学)の研究開発状況について

三浦 正俊\*

Masatoshi Miura

## 1. まえがき

通商産業省工業技術院は、大型工業技術研究開発制度(通称大型プロジェクト)において昭和55年度より一酸化炭素等を原料とする基礎化学品の製造法(通称C<sub>1</sub>化学)を採択し、研究開発を進めている。

大型プロジェクトの制度は、昭和41年に「超高性能大型電子計算機」「脱硫技術」「電磁流体(MHD)発電」の3プロジェクトで発足したもので、これは当時、我が国の経済が急成長するとともに、経済の自由化の要請が急激に強まっていた環境において、我が国の技術水準は、欧米からの技術の導入、その消化吸収によって高まりつつあったが、独創的な技術開発水準は低く、自由経済における技術開発競争に不安があった。このような背景のもとに、研究開発の大規模化、学際化、業際化に備え国の資金と民間企業の研究開発制度を結びつけ本制度が創設されたものである。

その後、本制度を母体として、昭和49年に新エネルギー技術の研究開発を行うサンシャイン計画、昭和53年に省エネルギー技術の研究開発を行うムーンライト計画がそれぞれの時代の要請を受けて発足している。

本制度発足当時は、3プロジェクト、年間予算約10億円であったが、18年目にあたる昭和58年度には、8プロジェクト、年間予算約160億円迄に発展している。

この間に20のプロジェクト(途中でムーンライト計画に移行した「MHD発電」「廃熱利用システムは除く)の研究開発を実施し、研究開発費総額は約1700億円にも達している。

本制度は、国民経済上重要かつ緊急に必要とされる大型工業技術であって、その研究開発に多額の資金と

長期の期間とを要し、かつ多大の危険負担を伴うために、民間企業を主体とした開発を実施し得ないものについて国が所要資金を負担し、産業界、学界等との密接な協力体制のもとに計画的かつ効率的に研究開発を実施するものである。

本制度による研究開発は、通産省工業技術院が中心となり、主として委託開発によって民間の活力を生かすとともに、国立試験研究所がそれに対する支援研究を行っている。

図-1に大型工業技術研究開発フロー図を示す。

## 2. C<sub>1</sub>化学大型プロジェクトの意義

(1) 我が国の化学工業は、原料の大部分を、石油を蒸留して得られるナフサ(揮発油)に依存しているが、石油は、近年質的に重質化の傾向にあること、また石油は、現在、供給が緩和の傾向にあるが、長・中期的には、それが良質なエネルギー資源であることから供給の逼迫が確実視されていることから、将来とも国民生活上あるいは産業活動上重要な基礎化学品の安定供給を続けていくためには、化学工業の原料の石油依存転換を図ることが必要である。

石油に代替する炭化水素資源としては、石炭、天然ガス、タールサンド、オイルシェール等が考えられる。これらの炭化水素資源を部分酸化法等により一酸化炭素と水素の混合ガス(合成ガス)にし、この原料ガスを原料としてエチレングリコール、エチレン、プロピレン等の基礎化学品を製造する技術が確立すれば、あらゆる炭化水素資源の化学利用が可能となり、基礎化学品の石油依存脱却が図れる。

(2) また、欧米先進企業においては、基礎化学原料多様化のため、C<sub>1</sub>化学の研究開発が積極的に進められており、一部では既にパイロットプラントによる研

\*工業技術院 総務部 C<sub>1</sub>化学担当研究開発官  
〒103 東京都港区虎ノ門3-8-21 第33森ビル

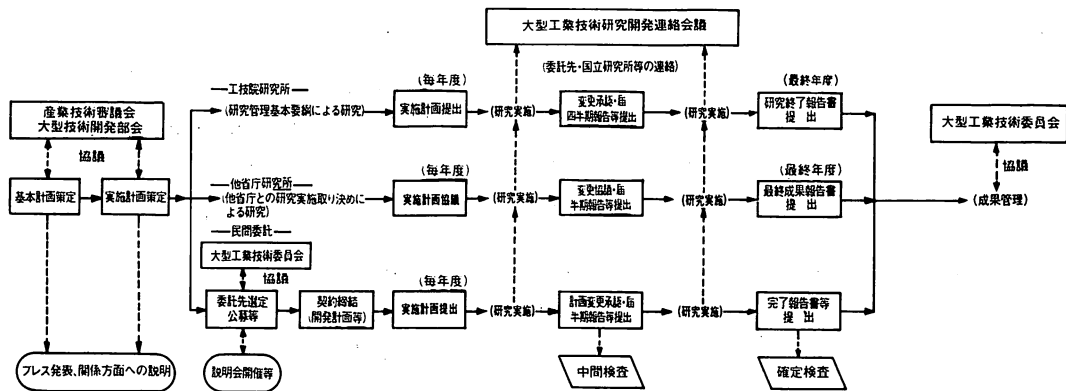


図-1 大型工業技術研究開発フロー図

究段階に到達しているものもあり、石油依存からの脱却を着実に図っている。

一方、我が国の技術水準の向上に伴い、現在では一般的に技術導入が困難となっており、C<sub>1</sub>化学についても我が国として独自に研究開発を行う必要があり、かつ早急に研究開発にとり組まなければ、主要な技術を欧米先進諸国に抑えられる恐れがあった。

(3) 我が国の石油化学企業は、国際的に中規模であり、C<sub>1</sub>化学のように基盤的分野に属する大型技術の研究開発の促進には、複数の企業の技術力を結集して、体系的かつ集中的に研究開発を行う必要がある。

(4) C<sub>1</sub>化学の研究開発は、幅広い基礎的な触媒探索から、ベンチ装置によるプロセス開発、パイロットプラントによる実証実験とかなり長期の研究期間が必要であり、それに伴う研究開発費用も巨額に達すること。さらに、リスクの高い未来技術であることから個別民間企業でこれを推進することは困難と考えられる。

従って、本研究開発は、国が中心となって国立研究機関、民間企業等の総力を結集し、国の研究開発として推進する必要があることから、大型プロジェクトの研究開発課題として採択された。

### 3. C<sub>1</sub>化学大型プロジェクトの概要

#### 3.1 「一酸化炭素等を原料とする基礎化学品の製造法」(C<sub>1</sub>化学)の研究開発基本計画

大型プロジェクトは、各プロジェクト毎に研究開発基本計画を定め、この計画を基に研究開発を進めることとしている。C<sub>1</sub>化学の研究開発基本計画は次のとおりである。

##### (1) 研究開発期間

昭和55年度から8年間

##### (2) 研究開発費総額

約150億円

##### (3) 研究開発の目標と方式

(イ) 石油の重質化及び供給上の制約に対応して、石油化学工業の抜本的原料転換を図るため、石炭、天然ガス等から得られる合成ガス（一酸化炭素及び水素ガスの混合ガス）を原料としたエチレングリコール、エタノール、酢酸、炭化水素等基礎化学品の新規製造技術を確認することを目的とする。

(ロ) この目的を達成するため、下記の研究開発を行うとともに、関連技術の開発を行う。

① 合成ガスを原料とするエチレングリコール、エタノール、酢酸、炭化水素等、基礎化学品の合成技術。

② 膜分離法を基本とするガス分離精製技術。

(ハ) 研究開発の方式は原則として下記によるものとする。

③ 基礎化学品の合成技術の開発に関しては、表1に掲げる性能を備えた高活性、高選択性の触媒の開発を行うとともに、ベンチスケール実験及びパイロットプラントによる実証試験を行う。

④ ガス分離精製技術に関しては、表2に掲げる性能を備えた高性能ガス分離膜の開発を行うとともに、膜分離法を基本とするガス分離精製システムの開発及びパイロットプラントによる実証試験を行う。

##### 3.2 C<sub>1</sub>化学研究開発体制

現在、殆んど大型プロジェクトにおいては、サブ研究項目の研究開発を担当する各企業が研究組合をつくり、工業技術院はその研究組合とプロジェクトの研究開発委託契約を結ぶシステムをとっている。このシステムをとることにより、組合員各企業は、プロジェクト全体を見ながら担当サブ研究項目の研究開発ができること、担当サブ研究項目はもちろんのことプロジェクトの全体計画に対しても研究開発責任が生じてく

表1 触媒の性能

	反応圧力 (kg/cm <sup>2</sup> )	反応温度 (°C)	一酸化炭素利用率(%)	定時収量 (g/ℓ・hr)		
				ロジウム系触媒使用時	非ロジウム系触媒使用時	
エチレングリコール合成	500以下	300以下	60以上	250以上	100以上	
エタノール合成	直接法	気相法	150以下	350以下	60以上	200以上
		液相法	500以下	300以下		
	間接法	350以下	250以下	80以上	—	
酢酸合成	100以下	300以下	70以上	300以上	180以上	
炭化水素合成	100以下	400以下	60以上*	—	70以上**	

\* エチレン・プロピレンの合計値

\*\* 間接法の場合は290以上

表2 ガス分離膜の性能

	使用圧力 (kg/cm <sup>2</sup> )	最高使用温度 (°C)	分離性能		透過係数 (cm <sup>3</sup> /cm <sup>2</sup> Hgcm <sup>2</sup> sec)
			水素/一酸化炭素 (容量比)	メタン/一酸化炭素 (容量比)	
多孔質膜	無機膜 有機膜	50以上	400	2~3	—
			150		
非多孔質膜(有機膜)	50以上	100	20以上	2~3	10~9以上

るため、組員各企業は互に協調して研究を進めざるをえなくなり、各企業間の研究情報交流の促進等、効率的に研究開発が進むこと等が期待される。

C<sub>1</sub>化学プロジェクトにおいても、基礎化学品の合成技術の開発に関しては、研究開発担当企業が「シー・ワン化学技術研究組合」をつかっており、工業技術院

は、この研究組合と研究開発委託契約を結んでいる。組員は14企業1研究法人より構成されている。ガス分離製精技術の開発に関しては、基礎化学品の合成技術と分野が異なることから、担当企業は研究組合に入っておらず、工業技術院は担当企業3社と個別に研究開発委託契約を結んでいる。工業技術院の化学技術研

研究項目	基礎化学品の新合成法										ガス分離製精技術										
	エチレングリコールの新合成法		エタノールの新合成法			酢酸の新合成法	炭化水素の新合成法					共通基盤研究	性能評価研究	ガス分離膜の開発							
担当研究機関	シー・ワン化学技術研究組合										化技研			化技研	化技研	膜メーカー個別3社					
研究細目	液相直接法	液相直接法	気相直接法	液相間接法	液相直接法	気相直接法	気相法(直接法、間接法)					—	—	シリカ膜	ポリスルホン膜	ポリイミド膜	テフロン膜				
実施者	住友化学	三菱化成	三菱油化	三井石油化学	(財)相模中研	東洋曹達	協和醗酵	三菱瓦斯化学	三井東圧化学	ダイセル化学	昭和電工	宇部興産	出光石化	丸善石化	日本石化	工業触媒部	工業触媒部	プロセッサ開発部	東洋紡	宇部興産	住友電工
主たる実施場所	中央研究所	総合研究所	中央研究所	総合研究所	相模中央化学研究所			新潟研究所	中央研究所	総合研究所	大分研究所	化学技術研究所					化学技術研究所	化学技術研究所	総合研究所	高分子研究所	大阪製作所
	高槻	青葉台	土浦	岩国	相模	模	原	新潟	大船	姫路	大分	筑波					筑波	筑波	敦賀	堅田	千葉

図-2 C<sub>1</sub>化学研究開発体系

究所は両方の分野において支援研究を行っている。

C<sub>1</sub>化学技術研究開発体系を図-2に示す。

3.3 C<sub>1</sub>化学研究開発の内容及び進め方

C<sub>1</sub>化学の研究開発は、石炭、天然ガス、オイルシェール、タールサンド等種々の炭素源から容易に得られる一酸化炭素と水素を原料として、エチレングリコール、酢酸等の基礎化学品を製造する技術を確認することが目標であり、具体的には以下の研究内容でスタートした。

(1) ガス源確保のための調査及び研究開発

(イ) ガス化技術の調査選択及び建設運転

既存及び開発中の各種ガス発生プロセスを調査し、本目的に最適なプロセスを選択し、各基礎化学品製造用のパイロットプラントにガス源を供給するためのガス化プラントを建設、運転する。

(ロ) ガス分離、精製技術の研究開発

各種基礎化学品の製造に適した混合ガス（一酸化炭素と水素の混合比、純度）を得るためのガス分離精製技術の開発を行う。

具体的には、機能性隔膜の開発、ベンチスケール実験装置、パイロットプラントによる分離精製技術の開発を行う。

(2) 基礎化学品の合成技術の研究開発

(イ) エチレングリコールの新製造法の開発

(ロ) エタノールの新製造法の開発

(ハ) 酢酸の新製造法の開発

(ニ) 炭化水素等の基礎化学品の新製造法の開発

以上の研究開発において、温和な反応条件下で選択率の高い長寿命触媒を開発し、ベンチスケール実験装置でプロセス開発を行った後、パイロットプラントによる実証研究を行う。

(ホ) 共通基盤研究

合成ガスから各種基礎化学品を合成する触媒反応機構の解明、プロセスの最適化のための研究等、本プロジェクトの共通基盤となるべき基礎研究を実施する。

図-3にC<sub>1</sub>化学の研究開発スケジュールを示す。

4. C<sub>1</sub>化学の進捗状況

4.1 全体のスケジュール

C<sub>1</sub>化学の研究開発は図-3に示すスケジュールで開始されたが、研究開発費の予算の制約から、現時点において多少スケジュールの手直しを余儀なくされている。C<sub>1</sub>化学の現在迄の研究開発費及び今後必要とする研究開発費を表3に示す。

図-4に現在におけるC<sub>1</sub>化学研究開発スケジュールを示す。

研究項目	年度	55	56	57	58	59	60	61	62										
1. ガス分離精製技術	ガス分離膜の分離性能評価研究																		
	ガス分離精製システム化研究																		
	要素研究 分離膜開発(製膜技術・モジュール化技術、モジュール試作)																		
	パイロット研究 (設計・製作・運転)																		
2. 基礎化学品の新合成法	エチレングリコールの新合成法	要素研究 触媒開発(触媒探索、触媒改良、プロセス開発)																	
	エタノールの新合成法																		
	酢酸の新合成法										ベンチ実験 (設計・製作・運転)								
	炭火水素の新合成法										パイロット研究 (設計・製作・運転)								
	C <sub>1</sub> 化学共通基盤の触媒研究										サポート研究								
共通基盤研究																			
3. ガス発生プロセス	各種プロセスの技術検討 最適のプロセスの選択																		
	パイロット研究 (設計・製作・運転)																		

図-3 一酸化炭素等を原料とする基礎化学品の製造法研究開発スケジュール

(1) ガス分離精製技術の研究開発スケジュール

本技術については、図-2に示すように3企業が膜の研究開発を行っている。昭和56年及び57年度に平膜の開発、性能評価を行った。昭和58年度には中空糸の製造及びモジュール化技術の研究を進めている。昭和59年度には小型モジュール（約15cmφ×30cm）を製作し、化学技術研究所で性能評価を行うこととしている。昭和60年度にはパイロットの設計を行い、昭和61年度以降にパイロット実験装置を製作し、運転評価を行うこととしている。

(2) 基礎化学品の新合成法の研究開発スケジュール

本研究開発については、図-2に示すように14企業及び1研究法人並びに化学技術研究所が触媒の研究開発を進めている。高压流通式反応装置等のマイクロ実験装置等により昭和59年度迄触媒探索を行うこととし、昭和57年度には有望な触媒も見出され始めたので、昭和58年度より、触媒探索に平行し、ベンチ装置による評価を開始している。昭和60年にパイロットプラントを設計し、昭和61年以降に製作し運転評価を行うこと

としている。

(3) ガス発生プロセスの研究開発スケジュール

本技術については、3.3 (1) (4)で述べているように要素技術の研究開発は実施しない。昭和60年にC<sub>1</sub>化学に最適なガス発生プロセスを調査研究をし、C<sub>1</sub>化学パイロットプラントにガス源を供給するためのガス化プラントの設計を行う。昭和61年以降にガス化プラントを製作し、運転を行うこととしている。

しかし、図-4に示すスケジュールは図-3に示すスケジュールより全体的に後送りになっている。従ってパイロットによる研究に余裕がなくなっており、本プロジェクトが昭和62年度中に終了するためにはかなりタイミングよく研究を進める必要がある。

4.2 研究開発の進捗状況

(1) ガス分離精製技術の進捗状況

膜の研究開発については、昭和57年度迄に平膜の状態においては、開発中の膜すべてが所要目標性能を達成していることが確認された。現在、中空糸の製膜条件及びモジュール化のための研究を進めている。

表3 C<sub>1</sub>化学の年度別予算表

(単位百万円)

研究項目	年度	55	56	57	58	59	60~62	計
ガス分離精製技術		5	57	373	507	387		
基礎化学品の新合成法		44	845	2,154	2,065	1,368	7,159	
ガス発生プロセス		0	0	0	0	0		
計		49	902	2,527	2,572	1,755	7,159	15,000

注) 59年度は概算要求額

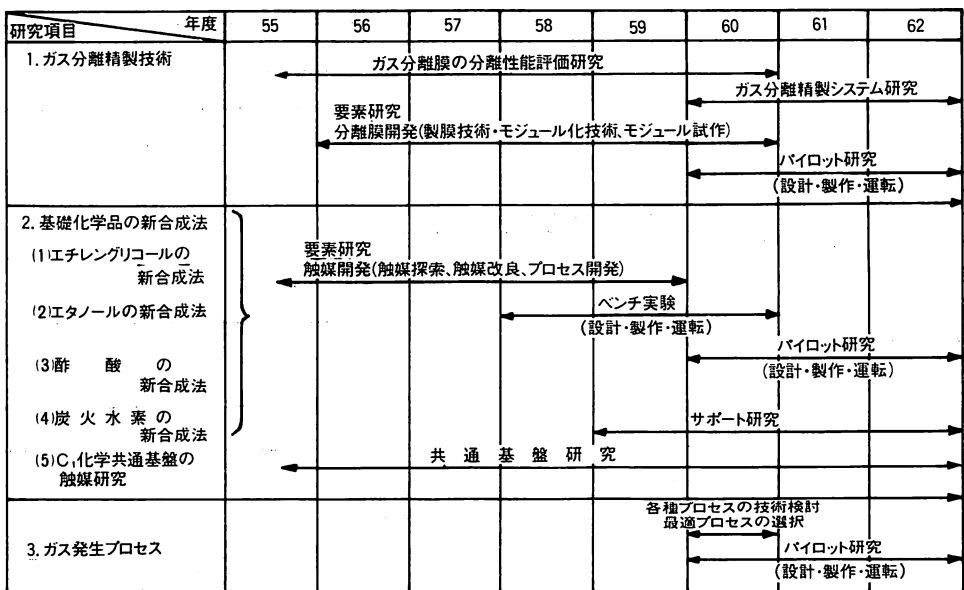


図-4 C<sub>1</sub>化学研究開発スケジュール

## (2) 基礎化学品の新合成法の進捗状況

高圧流通式反応装置等を用いて触媒探索を実施してきたが、現在までにかなり有望な触媒が見出されてきている。

## (イ) エチレンジグリコール

## ④ 気相直接法

気相直接法については、Ⅷ族金属担持触媒を中心に探索を行ってきたが、現在迄に有望な触媒が見出されていない。

## ⑤ 液相直接法

液相直接法については、イリジウム系、ルテニウム系、ロジウム系、パラジウム系等を中心に探索を進めてきた。現在、有望な触媒がいくつか見出されているが、特にルテニウム系に目標達成に近い触媒が見出されている。この触媒は、反応圧力、反応温度及び空時収量は目標値を達成しているが、一酸化炭素利用率が目標値（60%以上）よりやや低い。

## (ロ) エタノール

## ④ 気相直接法

気相直接法については、ロジウム系及びコバルト系を中心に探索を進めたが、ロジウム系に有望な触媒が見出されている。反応圧力及び反応温度は満足しているが、一酸化炭素利用率を満足するものは空時収量が低く、空時収量を満足するものは、一酸化炭素利用率がやや低い。

## ⑤ 液相直接法

液相直接法については、ルテニウム系、ロジウム系等を中心に探索を進めたが、ルテニウム系に有望な触媒が見出されている。この触媒は目標値を殆んどクリアしている。

## ⑥ 液相間接法

液相間接法については、コバルト系、ルテニウム系、ロジウム系等を中心に探索を進めたが、コバルト系に有望な触媒が見出されている。本触媒はすべての目標値を達成している。

## (イ) 酢酸

酢酸は気相直接法の研究開発を行っている。ロジウム系及び第Ⅷ族系を中心に探索を進めたが、ロジウム系の触媒にすべての目標値を達成したものが見出されている。

## (ロ) 炭化水素

## ④ 気相直接法

気相直接法においては、鉄系を中心に探索を進めているが、探索触媒の性能は目標値よりかなり低いとこ

ろにある。

## ⑥ 気相間接法

気相間接法においては、ゼオライト系を中心に探索を進めているが、有望な触媒が見出されている。反応温度を除けば（目標温度400℃以下に対し560℃）他の目標値を達成している触媒も見出されている。

## 5. 結 び

ガス分離精製膜の研究開発、触媒の研究開発ともかなりの成果があがっていると考えられるが、触媒については、基本計画に掲げる目標性能の他、触媒の寿命、回収率等、経済性に重要な影響を及ぼす要素があり、これらについても十分に検討する必要がある。

また、研究組合を構成する各企業は、企業間の垣根が全くとりはられ、企業間で一致協力して効率よく研究が進められていることは、特記すべきことと考えられる。

