

(3) 研究成果

各テーマの研究成果は下記のとおりである。その詳細を様式6に記載し、主要論文を巻末に付する。

中テーマ1-1：液相高機能微粒子合成技術の開発

<目的>

ペロブスカイト型化合物およびスピネル型化合物粉体を、クエン酸ゲル法、共沈法等の液相法を用いて調製し、巨大磁気抵抗比や高い初透磁率を示す材料を開発する。また、高温の反応場を制御することにより、高熱伝導性の窒化アルミニウム (AlN) 粉体の量産化技術の確立と応用展開を行う。

<新規性>

- ・クエン酸ゲル法によるペロブスカイト型化合物およびスピネル型フェライト微粒子粉体調製法の確立
- ・高温活性な液相場を利用した各種高融点無機化合物、特に、金属間化合物や窒化チタン系、窒化アルミニウム系の粉体およびバルク体の合成

<成果>

- ・ペロブスカイト型化合物について、 $\text{CaMn}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$ ($0 \leq x \leq 0.8$) 組成の粉体について電気・磁気特性を確認し、スピネル型化合物について、 MgFe_2O_4 フェライトにおける高磁気特性を示す新規組成を発見し、クエン酸ゲル法による微粒子粉体の合成に成功した。また、 $(\text{MnZn})\text{Fe}_2\text{O}_4$ フェライトについて、固相反応による粉体調製ではあるが、低温焼結により高い透磁率を達成した。
- ・高温活性な液相場について、AlN微粒子の低コスト窒化燃焼合成法を確立し、サイアロンセラミックス製ベアリングとして商品化した。

<実用化>

- ・燃焼合成法による微細 β -サイアロン粉末を開発し、メラミックスとして商品化した。
- ・AlN微粒子を用いて電子回路放熱パッケージ用の試作を行った。

<今後の展開>

- ・ペロブスカイト型化合物については、熱電材料として必要な特性である「ゼーベック係数が高い組成」を発見したので、デバイスの熱電素子としての更なる電気・熱特性の改善が必要であり、その検討を行う。
- ・スピネル型化合物については、 $(\text{MnZn})\text{Fe}_2\text{O}_4$ 粉体と同時焼結可能かつフェライトの特性を劣化させない絶縁材料の最適化を図り、小型・低背化を特徴とする製品を創出する。
- ・高温活性な液相場で調製された AlN 微粒子については、(株)イスマンジェイと共同研究を継続し開発を進める。アルミニウムナイトライド微粒子の合成に関しては、公的研究助成による外部資金の導入を視野に入れながら、(株)京写および(株)互応化学との共同研究を継続し開発を進める。

中テーマ 1-2：微粒子形態制御ならびに多機能複合微粒子調製技術の開発

<目的>

粒子析出過程での粒子形態制御に関する応用研究、固体高分子燃料電池用触媒として期待される白金粒子の形状制御と特性測定およびバイオディーゼル製造用の触媒の開発を行う。

<新規性>

これまで微粒子の性質として主として組成ならびに粒子サイズの効果に着目されてきた。ところが、これらに加えて機能発現のためには微粒子の形態、凝集体の形状、複合粒子の微細構造が重要であることを認識し、液相中での微粒子生成過程を根本から理解、制御することにより、これまでにはない微粒子の形態、凝集体の形状、複合粒子の微細構造が制御された高機能性微粒子合成法を開発することに新規性がある。

<成果>

・添加物、キャッピングポリマー添加量の最適化により正四面体、Cuboctahedral 構造を有する形状制御白金ナノ粒子の作製法を確立し、表面原子構造が制御されたナノ粒子は多結晶体よりも高い燃料電池触媒活性を有することを示した。

・ハロゲン物としてマンガン、マグネシウム、銅などの各系を用いた場合の晶癖を調べ、新しい形状の粒子を作製できた。また、被覆型複合粒子の作製をシミュレーションで支援し、試作した晶析装置で複合粒子ならびに中空粒子を作製した。

・表面の炭酸化や水和を極力防止することによって、酸化カルシウムをバイオディーゼル燃料用固体塩基触媒に利用できることを見出した。また、実用的な触媒の開発に成功し、使用済み天ぷら油をバイオディーゼル燃料化するための検討を行って酸化カルシウムの劣化を防止するための適切な前処理操作を見出した。

<実用化>

・アルカリを副生しないバイオディーゼル用触媒を開発し、天ぷら廃油からバイオディーゼル燃料を取り出す装置を試作した。

<今後の展開>

応用分野として燃料電池触媒、リチウムイオン電池材料、光機能材料、バイオディーゼル燃料製造用固体塩基触媒に的を絞って、これらの用途に向けた特性改善、低コスト化に寄与する微粒子合成技術の確立を目指した。進捗状況はテーマによって異なるが、おおむね実用化が期待される微粒子合成技術の確立ができたものの、得られた技術および微粒子の実用化にはまだ結びついていない。今後は、本研究で得られた成果をもとに、微粒子量産化技術の確立、製造装置試作、試験販売などを通して、実用化を目指す。なお、燃料電池触媒、リチウムイオン電池材料、バイオディーゼル燃料製造用触媒開発に関しては、平成 20～24 年度文部科学省知的クラスター創成事業（第 II 期）「京都環境ナノクラスター」の中で、発展的に実用化に向けた研究を進める。

中テーマ 1-3：微粒子計測技術の開発

<目的>

ナノ粒子の粒子径の測定技術の開発、微粒子材料の創製に極めて重要である粒子表面状態の計測技術とその評価技術の開発および微粒子の電子構造のモデル化に向けて、X線を用いた計測器の実用化に取り組む。

<新規性>

- ・ナノ粒子径領域に対して、正面からレーザ回折・散乱法や動的光散乱法を取り上げ、その性能評価を実施した研究はない。
- ・X線を用いた分析・計測を展開し合わせて小型X線源を開発しその応用を図る。
- ・AFM、SERSを用いた新規な計測法を開発し計測器への展開を行う。

<成果>

- ・多角度光散乱装置の試作により、多角度の同時測定データの解析アルゴリズムを作製した。
- ・ナノ領域の超微粒子を測定できるレーザ回折・散乱法を確立するために、紫外線レーザ光源を用いた簡単な装置を製作し、光学要素の透過性、紫外線レーザの有効性などの評価を行った。
- ・2結晶分光器を用いて、結晶試料のデータベースを作成し、次世代型究極の4結晶X線分光器の試作・開発を行った。
- ・異極像結晶の熱励起によるX線発生装置のフォトンフラックスを増加させるための種々の条件を見だし、X線源を用いて金属微粒子酸化用高濃度オゾンの発生に成功した。強誘電体結晶を使うことにより高電圧電源を不要とし、装置の小型化を可能にした。
- ・AFMを活用した微粒子表面状態の新しい計測技術の開発に成功した。

<実用化>

- ・2結晶蛍光X線装置用検出器、小型X線源、小型オゾン発生装置を試作した。
- ・粉茶製造装置を試作し、それを用いて茶あめを試作した。
- ・半導体 HPA マイクロ波精密反応装置を開発し、商品化した。

<今後の展開>

- ・2結晶分光器を用いたデータベースの蓄積。解析ソフトウェアの体裁を整える。分光装置の調整の自動化のためのハードウェア、ソフトウェアの開発を行う。
- ・小型X線源の高出力化。高寿命化。X線発生メカニズムの解明。高効率電子源の調査・試験。短時間スイッチング技術の開発。携帯型X線源の実用化に向けたリークによる特性劣化の改善
- ・茶葉の大量粉砕化技術の開発。大型ミリング装置の開発。粉茶を用いた商品開発
- ・AFMについては、温度と湿度を高精度に制御するよう、装置に改良を加える。

中テーマ 2-1：微粒子集積・配列化技術の開発

<目的>

電場や重力場を利用した微粒子集積化技術を開発し、微粒子配列技術を利用して作成した高導電率をもつ固体電解質材料を創製し、マイクロチャネルを利用する微粒子の分級・輸送技術ならびに微粒子合成システムの開発を行う。

<新規性>

手探りによる開発から脱皮するために、現象解析と理論的設計を可能にするシミュレーション技術の開発にも注力し、1)集積化した微粒子構造の表面増強ラマン散乱基板への利用、2)光センサーやフォトニック結晶など光学デバイスの新規工業的製造、3)次世代(超LSIをさらに進展させた)インテリジェントマテリアルの開発に不可欠な3次元材料(回路)組織の形成、4)導電性・光導波性を発現し耐光・耐水安定性に優れた電子材料のプラズモニクス分野への応用、5)有機ELデバイスの寿命向上を狙った第一原理計算、6)微粒子分級型複合マイクロ流路の詳細設計を行う。

<成果>

- ・小粒子流れによる大粒子規則配列の促進や適切な配合比で塗布を行うことの重要性(2成分系の利点)に加え、雰囲気湿度の上昇、振動・溶媒流れの付与等が規則性向上に有効なことを見出すと共に、コロイド溶液を連続供給できる塗布装置を開発して配列の大型(大面積)化に展開した。

- ・メゾ粒子吸着系の Brown 動力学シミュレーション手法を構築し、基板上吸着粒子の2次元的秩序構造形成メカニズムを定性的に解明すると共に、その定量的モデル化に成功した。

- ・CFD解析とPIV・PTV計測を融合したプロトタイプ設計手法をほぼ確立し、異なるサイズ(1, 3, 10 μm)の微粒子の分級に成功した。

<実用化>

- ・直流から交流電場に変え、3次元集積化電極開発に向けた複合粒子の集積条件を明確化し、粒子集積装置の試作品を完成させた。

<今後の展開>

- ・2次元あるいは3次元配列が適用できる分野を探索すると共に、配列に及ぼす粒子の均一性や形状について調べ、開発した集積法が実際の系に適用可能かを検討する。

- ・固体電解質に限らず、様々な複合粒子を規則配列させ、3次元的に配列・集積させた集積素子の機能化を目指す。

- ・複合マイクロ流路システムの実操作(高濃度の微粒子輸送と分級)に対応可能なDEM-DNS練成シミュレーションに基づくモデル化手法の開拓を目指す。

中テーマ 2-2：超微細電子写真画像形成技術の開発

<目的>

トナー特性評価法に関するテーマと有機的な繋がりを深めながら研究を行い、計算化学的方法によるトナー微粒子の帯電設計、トナー特性評価法の開発を行って、電子写真システムに最適なトナー特性の設計法を開発する。

<新規性>

電子写真システムの設計において、装置内のトナーの搬送、帯電、飛翔、現像、クリーニングなど各部における粒子挙動を逐次明確にすることが可能であり、その結果をトナー材料の設計ならびに電子写真システムのトータルプロセス設計にフィードバックできる。そのためには微視的なスケールから大規模な領域までシミュレーションをハイブリッド化する必要があり、その融合のためのアルゴリズム開発に新規性がある。また、微粒子の帯電量測定装置の基礎となる理論・実験は世界でも最先端のものである。

<成果>

- ・帯電量分布を求める装置を試作した。本装置の性能試験において、強く帯電した微粒子がサンプリング部の内壁に多量に沈着するのを防ぐため、位相反転交流電界制御方式による粒子サンプリング装置を試作して実験を行った。
- ・DEM-FEM連成による1成分現像器内トナー流動挙動シミュレーション法ならびにブレードクリーニング挙動シミュレーション法の開発を行なった。また、DEMによる2成分現像プロセス内の現像剤挙動シミュレーション法の開発をし、トナー表面分割サイトに帯電モデルを組み込んだ1成分現像器内トナー流動挙動シミュレーション法を開発した。
- ・DEMのアルゴリズムの改善、プログラムチューニングにより、DEMの高速化を達成し、DEMの並列化を行い、大規模計算を可能とした。また、高速DEMを利用した2成分電子写真システム現像部の粒子挙動解析プログラムを構築した。更に、マルチコアCPUにおける高度並列アルゴリズムを構築した。

<実用化>

- ・粉粒体流動性試験装置を開発し、商品化した。
- ・帯電分布量測定装置を試作した。
- ・電子写真シミュレータ開発コンソーシアムを立ち上げた。また、2成分電子写真システム現像部の設計支援シミュレーションソフトを試作した。

<今後の展開>

- ・汎用型帯電量分布測定装置の技術移転を目指して、装置の開発を行う。また、試作した帯電量分布測定装置を用いて、粒子の帯電量分布に及ぼす原因の解明を系統的に進める。
- ・電子写真設計支援シミュレータの試作を引き続き継続し、コンソーシアム参加企業でのテスト、エラーチェック、要望、意見交換を行いながら、シミュレータの開発に取り組む。また、改良並列計算アルゴリズムと電磁相互作用モデルを実装して、高機能高速粒子シミュレータを構築し、実用化する。

中テーマ 2-3：微粒子材料構造化技術の開発

<目的>

高機能電子セラミックス材料の構造設計とプロセッシング設計を支援するシミュレーション法の開発と微粒子コンポジット材料の開発を行う。また、環境調和型電子回路基板や電子機器用構造材料としての竹繊維微粒子強化型生分解性コンポジット材料の開発、新しいコンポジット材料作成方法にもとづく難燃材料の開発を行う。

<新規性>

微粒子を扱う新たなシミュレーション方法の開発により、粉体现象の理解と工学解析を推し進め、材料構造の最適設計と粉体プロセッシングの高度な制御を行う。

ナノコンポジットの作製方法においては、ヘテロ凝集法を提案し、無機ナノ粒子と高分子ラテックス粒子との均一な混合物を調製する。さらに、射出成形できる低環境負荷の複合材料ペレットの完成、半導体検査用プローブ・ディスクへの応用開発が挙げられる。

<成果>

・誘電・圧電・磁性セラミックスの微構造設計法を構築し目的の特性を発現する微構造の推定が可能となった。また、その微構造を形成させるためのセラミックス生産プロセスに対して新規なシミュレーション手法を完成させた。

・ヘテロ凝集法によるナノコンポジットを作成し、ヘテロ凝集法でもナノ粒子が良く分散していることを示せた。また、ラポナイト粘土微粒子を添加すると、無機物質重量が45%になっても、難燃化試験で最も厳しい、UL94V-0試験に合格する材料を作製することができた。

・MFC（超微細竹繊維）とPLAとの複合ペレットの製造法に対して、水分散性PLAを用いることによって、BMFCを90%含有するペレットを試作した。BMFC/PLA複合材料の特性評価、特に、強度、耐熱性について評価した。必ずしも成形品の強度が高くなかったが、2軸混練押出機を用いて、ドライPLAペレットを用いたBMFCの均一分散方法を、スクリーエレメントの工夫、組み合わせで克服した。

<実用化>

- ・耐熱性を向上させたマイクロ竹繊維強化 PLA ペレット
- ・竹の MFC によるフィルム
- ・竹繊維を利用した薄型テレビ用スピーカーのスピーカーコーン

<今後の展開>

高機能電子セラミックス材料の微構造設計とプロセッシング技術の開発テーマについては、知的クラスター創成事業(第Ⅱ期)「京都環境ナノクラスター」で、実際の生産プロセスに適用して、実用化に向けた研究に発展させる。

機能材料として取り上げた ABS 樹脂の無機ナノ粒子とのナノコンポジットは、従来よりも低含有量で難燃化に成功したが、機械的強度の低下を防ぐことができず、この点を改良する研究を行う。