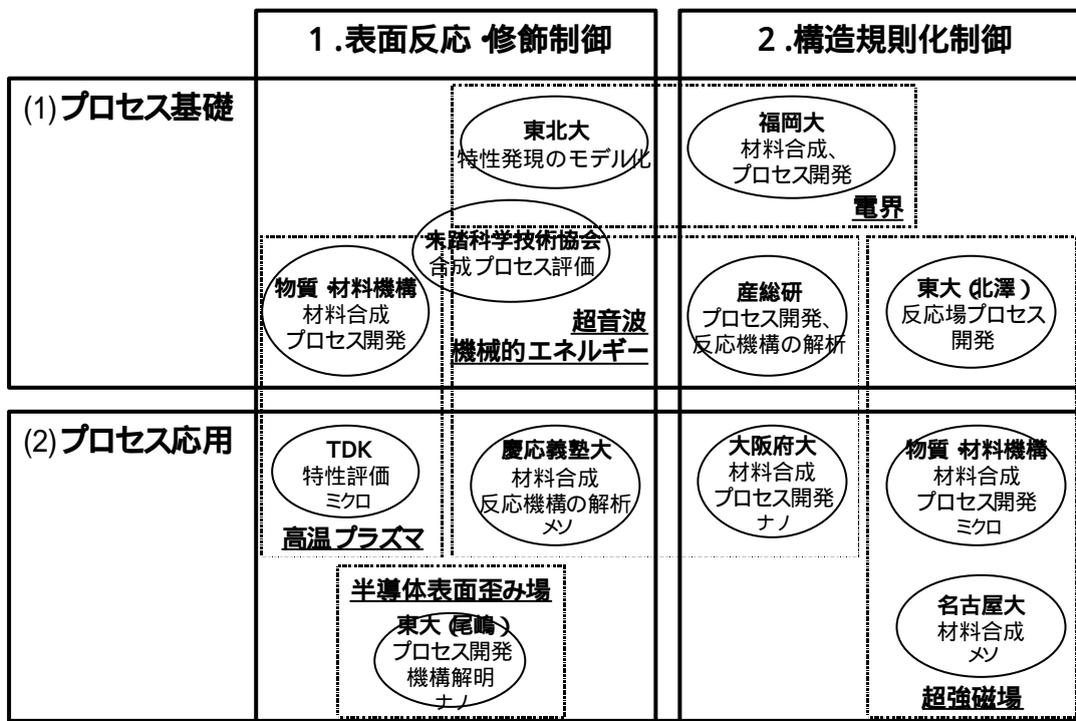


# 協奏反応場の増幅制御を利用した新材料創製に関する研究

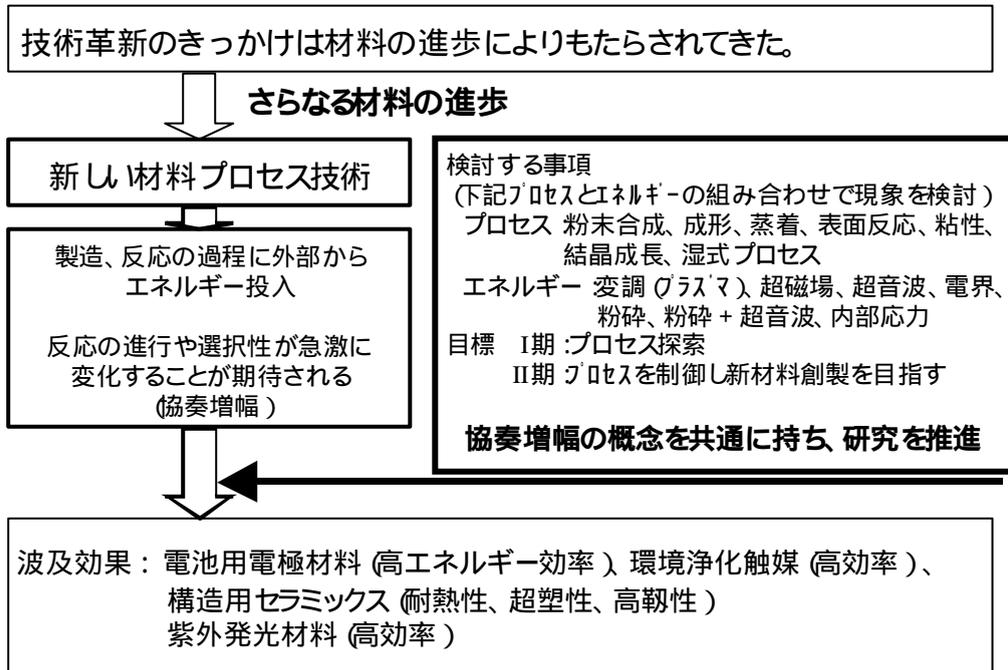
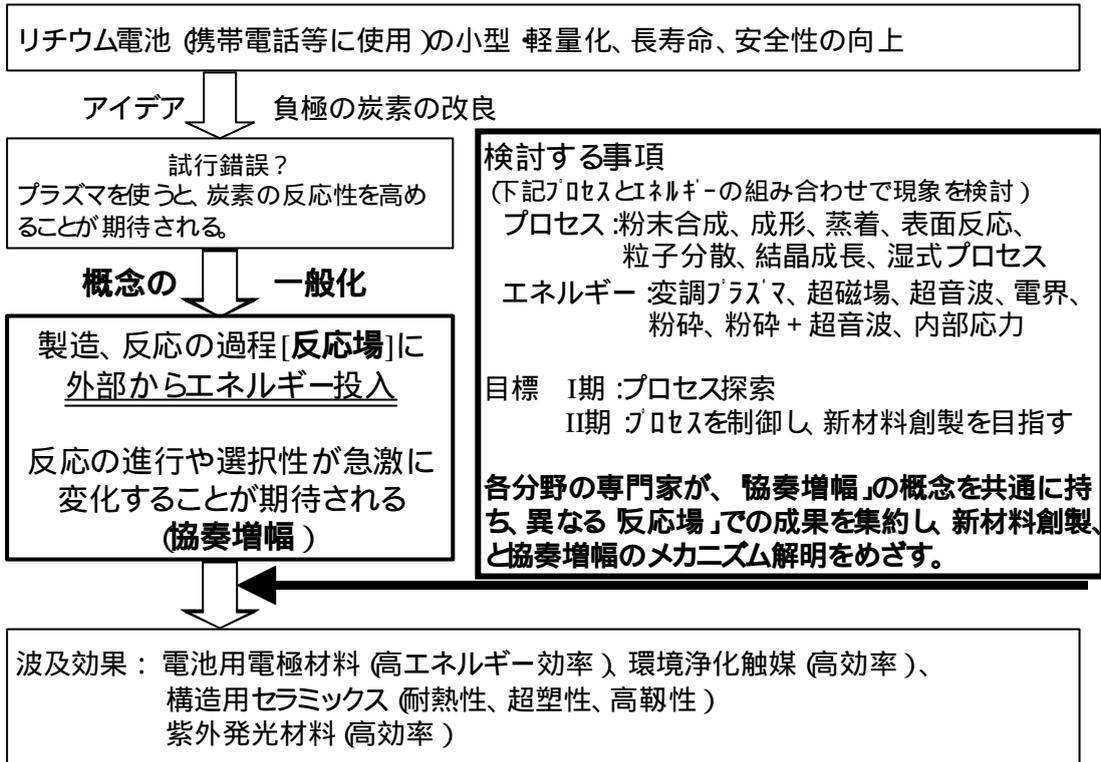
第 期：H10～H12 年度、第 期：H13～H14 年度

研究の概要・目標	諸外国の現状等	研究進展 成果がもたらす利点
<p><b>1 何を指している</b></p> <p>「協奏増幅」といふ新しい現象を利用して新規な材料(先端エネルギー材料、先端構造材料等)を開発する。</p> <p>第 期では材料創製プロセスに協奏反応場を導入し、その中で生じる新現象の抽出と反応プロセスの制御を目指す。</p> <p>第 期では第 期において構築した協奏反応場プロセスにより新規材料の創製を目指す。</p> <p><b>2 何を研究している</b></p> <p>電界・超磁界・機械的歪み・超音波・衝撃力等のエネルギーを制御・操作する専門家が集い、これを反応場に与えて協奏増幅するような場(協奏反応場)を探索し、これを元に新材料の創製を目指す。</p> <p><b>3 何が新しいのか</b></p> <p>協奏反応場という新しい概念の元に異分野の研究者が結果し、新材料創製を目指すこと。</p> <p>協奏増幅とは？：          “反応の進行する場」に「外界」から磁場や超音波などのエネルギーを加えると、反応の進行や選択性が急激に変化するなど非線形な応答を示す」現象</p>	<p><b>1 現状</b></p> <p>超音波、衝撃エネルギー等を駆使した個別の材料プロセス技術(原材料の前処理等)は下に記したように世界的にほぼ同レベルの状況であるが、「協奏増幅」という概念に基づいて新材料創製を目的として研究者が結果する試みは世界初である。</p> <p><b>2 我が国の水準</b></p> <p>強磁界利用プロセス          世界的にも始まったばかりであり、これから成果が期待される。          液体Heを使用しない強磁場発生装置は日本独自。</p> <p>電界・超音波利用プロセス          世界の第1級の研究者が、微粒化、複合化を目指して活発に研究を行っており、横並びの状態。</p> <p>プラズマ利用プロセス          特に熱プラズマの断続的な発生を制御する技術(温度を不連続的に変化させる技術)は世界に先駆けて日本で開発した。この優位を保って反応場探索に応用する。</p>	<p><b>1 世界との水準の関係</b></p> <p>「協奏増幅」という切り口に異なるプロセスの研究者が結果して、協奏反応場に関する成果を共有するという試みは世界初であり、この視点で研究を進めることにより日本独自の新材料創製技術の確立が期待できる。</p> <p><b>2 波及効果</b></p> <p>第 期          日本独自のプロセス要素を進展させて、新規の材料創製プロセスを構築し、世界の研究をリードする。</p> <p>第 期          開拓した協奏増幅反応場という新規材料プロセスにより新材料を創製する。</p> <p>新規材料として創製が期待できる具体的事例          エネルギー材料(新規電池用電極材料)          先端構造材料(耐熱性超塑性セラミックス)          新規活性触媒(高効率環境浄化)          光学材料(高効率紫外発光体)</p>



# 協奏反応場の増幅制御を利用した新材料創製に関する研究

第 期：H10～H12 年度、第 期：H13～H14 年度



# 所要経費（第 期）

（単位：千円）

研究項目	担当機関等	研究担当者	H10 年度	H11 年度	H12 年度	所用 経費
1. 原子・電子系反応場の協奏増幅を利用したプロセス探索に関する研究 (1)電磁界変調による表面反応の協奏増幅を利用した高性能エネルギー材料の創製 熱プラズマエネルギーの間けつ変調による表面機能材料の創製 電気化学特性評価による表面機能の協奏増幅メカニズムの解明 (2)イオン導電体表面反応場の変調電界による協奏増幅メカニズムの解明 (3)連続強磁界印加による蒸着過程の協奏増幅と結晶配向制御 (4)協奏増幅を利用する材料プロセス科学の構築に関する研究 2. 歪格子系反応場の協奏増幅を利用したプロセス探索に関する研究 (1)電界印加により粘性が協奏増幅する複雑流体の創製 (2)メカノケミカル反応場の制御と高機能性超微粒子の創製 (3)ソフトメカノケミカル反応場の協奏増幅による固相複合化メカニズムの解明 (4)半導体表面の歪み場の協奏増幅を利用したデバイス創製反応制御 3. マクロ化学系反応場の協奏増幅を利用したプロセス探索に関する研究 (1)電・磁界制御によるコロイドプロセスの協奏増幅を利用した特殊構造物質の創製 (2)磁界・超音波を反応因子とした液体プロセスの協奏増幅メカニズムの解明 ソノケミカル反応場を利用した構造制御 磁界による液体プロセス制御 (3)超音波反応場間の協奏増幅を利用した複合材料の創製	科学技術庁無機材質研究所 先端機能性材料研究センター 科学技術庁研究開発局 TDK(株)開発研究所(委託) 科学技術庁研究開発局 未踏科学技術協会(委託) 東北大学科学計測研究所(再委託) 科学技術庁無機材質研究所 名古屋大学工学部プロセス工学科(委託) 科学技術庁研究開発局 未踏科学技術協会(委託) 科学技術庁研究開発局 福岡大学理学部(委託) 通商産業省工業技術院物質工学工業技術研究所 化学システム部 科学技術庁研究開発局 慶応大学理工学部応用化学科(委託) 通商産業省工業技術院物質工学工業技術研究所 東京大学大学院工学系研究科応用化学専攻(委託) 科学技術庁金属材料技術研究所 プロセス制御研究部 通商産業省工業技術院名古屋工業技術研究所 構造プロセス部 科学技術庁金属材料技術研究所 東京大学大学院工学系研究科応用化学専攻(委託) 科学技術庁研究開発局 未踏科学技術協会(委託) 大阪府立大学工学部機能物質科学科(再委託) 科学技術庁研究開発局	石垣 隆正 (主任研究官)  丸山 哲 (主任研究員)  水崎 純一郎 (教授)  浅井 滋生 (教授)  栗野 常久 (理事長)  祢宜田 啓史 (教授) 伊ヶ崎 文和 (室長)  仙名 保 (教授)  尾嶋 正治 (教授)  目 義雄 (室長)  三留 秀人 (室長)  北沢 宏一 (教授)  前田 泰昭 (教授)	29,584	36,382	27,900	93,866
	9,532	12,510	9,197	31,239		
	9,055	11,506	8,505	29,066		
	10,004	12,505	9,300	31,809		
	12,228	14,011	10,273	36,512		
	8,426	10,781	7,916	27,123		
	21,484	28,720	21,284	71,488		
	8,001	10,714	7,590	26,305		
	10,070	12,508	7,894	30,472		
	27,674	33,713	23,796	85,183		
	14,497	18,519	12,510	45,526		
	12,062	15,139	10,199	37,400		
8,021	10,583	7,999	26,603			
4. 研究推進	科学技術庁研究開発局		475	411	574	1,460
合計			181,173	228,002	164,937	574,052

# 所要経費（第 期）

（単位：千円）

研究項目	担当機関等	研究担当者	H13 年度	H14 年度		所用 経費
1.反応場の協奏増幅による表面反応プロセス制御に関する研究 (1) 表面反応場の協奏増幅プロセス技術開発に関する研究 反応性熱プラズマ反応場の協奏増幅を利用した非平衡表面プロセス技術に関する研究 イオン導電性固体表面の協奏増幅を利用した電気化学反応プロセス制御に関する研究 協奏増幅を利用する材料プロセス科学技術の構築に関する研究 (2) 表面反応場の協奏増幅プロセス制御の応用展開に関する研究 結晶成長反応場における協奏増幅を利用した半導体/磁性体ナノ構造制御に関する研究 微粒子界面反応場の協奏増幅を利用した複合化ナノ構造制御に関する研究 粉末表面反応場の協奏増幅を利用した高性能マイクロ粒子作製制御に関する研究 2.反応場の協奏増幅による構造規則化プロセス制御に関する研究 (1) 協奏増幅を利用した構造規則化プロセス制御技術開発に関する研究 擬似重力下粒子系の協奏増幅を利用した高次構造形成プロセス制御に関する研究 超音波複合反応場における協奏増幅プロセス制御に関する研究 電界印加複雑流体系における協奏増幅プロセス制御に関する研究 (2) 協奏増幅を利用した構造規則化プロセス制御の応用展開に関する研究 ソノケミカル反応場の協奏増幅を利用したナノ複合化微粒子合成制御に関する研究 強磁界下結晶成長反応場の協奏増幅を利用したナノ配向構造制御に関する研究 電・磁界印加した粒子分散場の協奏増幅によるマイクロ構造規則化制御に関する研究 3. 研究推進	(独)物質・材料研究機構 物質研究所	石垣 隆正 (アソシエイトディレクター)	42,043	29,660		71,703
	東北大学 多元物質科学研究所	水崎 純一郎 (教授)	9,756	8,937		18,693
	(社)未踏科学技術協会	志村 幸男 (主任研究員)	11,840	12,299		24,139
	東京大学大学院 工学系研究科	尾嶋 正治 (教授)	11,970	8,150		20,120
	慶応義塾大学 理工学部	仙名 保 (教授)	9,606	6,995		16,601
	TDK(株) 開発研究所	丸山 哲 (主幹研究員)	10,997	7,900		18,897
	東京大学大学院 新領域創成科学研究科	花栗 哲郎 (助教授)	12,569	10,877		23,446
	(独)産業技術総合研究所 セラミックス研究部門	飯田 康夫 (グループリーダー)	14,403	10,963		25,366
	福岡大学 理学部	祢宜田啓史 (教授)	9,576	6,910		16,486
	大阪府立大学大学院 工学研究科	前田 泰昭 (教授)	10,379	7,414		17,793
名古屋大学大学院 工学研究科	浅井 滋生 (教授)	9,988	8,342		18,330	
(独)物質・材料研究機構 材料研究所	目 義雄 (ディレクター)	38,536	27,422		65,958	
			384	384		768
合計			192,047	146,253		338,300

# 研究成果の概要

## 総括

本研究は、技術革新の基盤となる新材料創製をめざして、材料プロセス技術に横断的にメスを入れ、プロセス技術の基盤因子として「反応場」を重要な概念として強く意識し、革新的な材料プロセスを開発することを目的とした。特に、研究を開始するにあたってつくりあげた「協奏増幅」という現象の捉え方を、総合研究としての連携の切り口として推進した。第 1 期の研究では、反応場の協奏増幅を利用した「プロセス探索」を共通のキーワードとして、材料プロセス新技術の開発、反応場の現象解明を目的とした。第 2 期では、第 1 期で得られたシーズを反応場の「プロセス制御」を通じて具体化することを意図した。

\* 反応の進行する「場」に「外界」からエネルギーを加えると、「場」が「非線形な応答」を示す場合がある。この現象を「協奏増幅」と定義する。

とりわけ、第 1 期の研究を通じて明らかになった、協奏増幅効果による「材料表面の反応性制御」と「材料中の構造規則化制御」という2つの重要なアプローチをとり、新材料の創製を目指した。さらに、材料の具体化とともに、「協奏増幅メカニズムの解明」もプロセス制御の重要な研究要素としてとらえ、新しい材料プロセス科学の構築を目指して研究を推進した。それらの中には、第 1 期で開発された新しい反応場（パルス変調熱プラズマ反応場、電磁場制御コロイドプロセス、ソノ・メカノケミカル反応装置）を材料プロセスに応用して得られた成果（高効率紫外発光酸化亜鉛、高配向、多孔度高度制御セラミックス焼結体）、第 2 期で新たに開発された反応場（磁界による粉体間の新相互作用の発見、固体電解質酸素負イオン源の開発）とともに、第 1 期の成果をさらに実用的なレベル近づけた材料技術（熱プラズマを利用した新しいリチウム二次電池負極材の開発、新環境触媒として注目されている複合金属超微粒子の新製造法、歪み場制御による磁性量子ドット成長）などが含まれていることから、計画以上の実効性のある成果が得られ、また多くの課題が世界的に見ても高いレベルに達したと評価できる。

## サブテーマ毎、個別課題毎の概要

本研究は、技術革新の基盤となる新材料創製をめざして、材料プロセス技術に横断的にメスを入れ、プロセス技術の基盤因子として「反応場」を重要な概念として強く意識し、革新的な材料プロセスを開発することを目的とした。特に、研究を開始するにあたってつくりあげた「協奏増幅」という現象の捉え方を、総合研究としての連携の切り口として推進した。第 1 期の研究では、反応場の協奏増幅を利用した「プロセス探索」を共通のキーワードとして、材料プロセス新技術の開発、反応場の現象解明を目的とした。第 2 期では、第 1 期で得られたシーズを反応場の「プロセス制御」を通じて具体化することを意図した。

\* 反応の進行する「場」に「外界」からエネルギーを加えると、「場」が「非線形な応答」を示す場合がある。この現象を「協奏増幅」と定義する。

とりわけ、第 1 期の研究を通じて明らかになった、協奏増幅効果による「材料表面の反応性制御」と「材料中の構造規則化制御」という2つの重要なアプローチをとり、新材料の創製を目指した。さらに、材料の具体化とともに、「協奏増幅メカニズムの解明」もプロセス制御の重要な研究要素としてとらえ、新しい材料プロセス科学の構築を目指して研究を推進した。それらの中には、第 1 期で開発された新しい反応場（パルス変調熱プラズマ反応場、電磁場制御コロイドプロセス、ソノ・メカノケミカル反応装置）を材料プロセスに応用して得られた成果（高効率紫外発光酸化亜鉛、高配向、多孔度高度制御セラミックス焼結体）、第 2 期で新たに開発された反応場（磁界による粉体間の新相互作用の発見、固体電解質酸素負イオン源の開発）とともに、第 1 期の成果をさらに実用的なレベル近づけた材料技術（熱プラズマを利用した新しいリチウム二次電池負極材の開発、新環境触媒として注目されている複合金属超微粒子の新製造法、歪み場制御による磁性量子ドット成長）などが含まれていることから、計画以上の実効性のある成果が得られ、また多くの課題が世界的に見ても高いレベルに達したと評価できる。

## 波及効果、発展方向、改善点等

表面反応プロセス制御では、第 1 期に開発された新しい反応場、パルス変調高周波熱プラズマを実際に材料プロセスに応用することで得られた酸化亜鉛紫外発光体の高効率化が注目される。酸化亜鉛は低圧電子線で発光する高効率蛍光体として知られており、真空蛍光管や電界発光ディスプレイとして使用されてきた。近年、酸化亜鉛には紫外発光素子への応用に対する期待が高まっている。ZnO への水素ドーピングにより紫外発光効率が上昇される可能性は指摘されていたが、プラズマを利用した方法ではプラズマ自身からの輻射熱やラジカルが再結合する際に反応熱によって、試料に熱的なダメージが加わることが問題であった。そこで、パルス変調プラズマ法といふ新しいプラズマ発生技術を ZnO への水素ドーピング処理に利用して非常に大きな紫外発光効率をえることができた。本成果を発展させていくことにより、省エネルギー型高輝度ディスプレイ、高感度シンチレーター、DVDピックアップ用レーザー、紫外 LED、環境センサーなどへの応用が期待できる。

プラズマの利用では、第 1 期から応用を意識した研究が進めていたリチウムイオン二次電池の負極材としての炭素粉末でも粒子表面の特性制御を追求することにより、人造黒鉛粉末の電極特性が特異的に上昇するのを見いだし、プラズマ表面修飾の可能性を示すことができた。

固体電解質表面の電場制御では、当初目的とした表面反応制御、ガスセンシングに加えて、第 1 期では、酸素負イオンビームの取り出しに成功した。この方法は、イオン源として従来にない固体表面からのイオン放出を利用するものであり、その高電流放出により多くのプロセス技術への応用が期待される。

半導体表面の歪み場制御は第 1 期ですでに多くのプロセスで有効性が確認され、たくさんのシーズが報告されていたが、第 1 期ではさらに、磁性エレクトロニクス素子にとって応用上重要な特性を持つ閃亜鉛鋅型構造の MnAs 量子ドットや、光コンピュータの実現に有望な LiNbO<sub>3</sub> 上の GaN、発光デバイスの高性能化が期待される MnZn フェライト基板上的 族窒化物等の結晶成長に世界で始めて成功するなど大きな展開を見せた。

同様の展開は、ソノ・メカノケミカル複合反応場でも示され、対象材料を金属酸化物セラミックス材料だけでなく、有機 - 無機複合材料に拡大できることを示した。

表面反応プロセスでは、見いだされた現象のメカニズムは不明であるが興味ある内容が多く見いだされたとの指摘を受けており、メカニズムのさらなる追求により、実用に結びつけるイメージを具体化する必要があると考えられる。

構造規則化プロセスでは、様々な手法で材料の構造規則化が追求された。第 1 期のもっとも注目される成果として、非磁性体であるアルミナの高配向セラミックスを実現させた強磁場下のコロイドプロセッシングがあげられるが、第 1 期ではさらに物質の適用範囲を拡大させて、酸化チタン、酸化亜鉛といった酸化物セラミックスばかりでなく、炭化チタン、窒化アルミニウムといった非酸化物セラミックスにも適用可能なことを示した。さらに、電場、超音波場、あるいは化学的な制御を組み合わせ、外場制御コロイドプロセッシングといえる領域を構築した。

磁場制御プロセスでは、さらに、高磁場下で生成した疑似無重力系反応場における粒子制御という展開も行われた。ここでは、具体的な物質分離、規則化配列といった応用への展開の基礎となる高磁場下の粉末粒子間に働く相互作用の理解にも成功した。また、気相及び液相からの結晶成長プロセスへの磁場効果に関しても多くの具体的な結果が得られたが、必ずしも明快に説明できない部分もあり、メカニズムの解明とともにプロセスのさらなる発展が期待される。

超音波場では、第 1 期からいろいろな特殊構造ナノ粒子の合成といった、応用分野で興味ある結果を示してきたが、第 1 期ではその応用展開とともに、超音波場のキャラクタリゼーションにも大きな進歩が示された。第 1 期から取り組んだ超音波場の計測技術の展開により、超音波による液体中のバブル生成とその中での現象に関する理解においても世界的にも最前線といえる領域に到達した。

電場による液体の規則化を行う電気粘性流体の分野でも、粘性増大メカニズムに関して理解がすすみ、実用上からのぞまれる特性発現に関する手がかりが得られた。

構造規則化プロセスでは、現象発現メカニズムの解明がプロセス応用と表裏一体の関係にあるべきであることを示した。これは、表面反応プロセス制御で扱っている反応場にもメカニズム解明の進め方をさらに加えることにより、新しい反応場の適用範囲の拡大、材料の具体化につながることを期待される。

# 研究成果公表等の状況

## (1) 研究発表件数

	原著論文による発表	左記以外の誌上発表	口頭発表	合 計
国内	第 期 123 件	第 期 72 件	第 期 358 件	第 期 553 件
	第 期 98 件	第 期 71 件	第 期 363 件	第 期 532 件
国際	第 期 212 件	第 期 21 件	第 期 150 件	第 期 383 件
	第 期 239 件	第 期 12 件	第 期 213 件	第 期 464 件
合計	第 期 335 件	第 期 93 件	第 期 508 件	第 期 936 件
	第 期 337 件	第 期 83 件	第 期 576 件	第 期 996 件

## (2) 特許等出願件数

第 期 26 件 (うち国内 25 件、国外 1 件)  
 第 期 31 件 (うち国内 31 件、国外 0 件)  
 合計 57 件 (うち国内 56 件、国外 1 件)

## (3) 受賞等

第 期 10 件 (うち国内 10 件、国外 0 件)

1. 金属学会論文賞 (平成 11 年 11 月) 名古屋大 浅井滋生
2. ホソカワ粉体工学振興財団 KONA 賞 (平成 11 年 1 月) 慶応大 仙名保 等

第 期 19 件 (うち国内 17 件、国外 2 件)

1. 浅井滋生、日本金属学会論文賞、平成 13 年 9 月
2. 目 義雄 : 「市村学術賞」,平成 14 年 . 等

## (4) 主な原著論文による発表の内訳

\* 発表者氏名 : 発表題目,文献名,巻(号),頁,掲載年)の順

### 国内誌 (国内英文誌を含む)

- (1) 丸山哲, 栗原雅人, 石垣隆正, 渡邊賢司, 滝澤利雄, 守吉佑介: 「球状フェノール樹脂粉末の熱プラズマ処理により調製した多孔性炭素粉末の電気化学特性」, 日本化学会誌, 2002、27-35.
- (2) T. Uchikoshi, T. S. Suzuki, H. Okuyama and Y. Sakka : "Electrophoretic Deposition of  $\alpha$ -Alumina Particles in a Strong Magnetic Field", IMP2002, 263-66, (2002)

### 国外誌

1. N. Ohashi, T. Ishigaki, N. Okada, I. Sakaguchi, T. Sekiguchi and H. Haneda: "Effect of Hydrogen Doping on UV Emission Spectra of Various Types of ZnO", Appl. Phys. Lett., 80, 2869-2871 (2002).
2. Y.L. Li and T. Ishigaki : "Core-Shell Micron-Scale Composite of Titanium Oxide and Carbide Formed through Controlled Thermal Plasma Oxidation ", Chem. Phys. Lett., 367, 561-565(2003).
3. Y. Sakka, T. S. Suzuki, K. Morita, K. Nakano and K. Hiraga : "Colloidal Processing and Superplastic Properties of Zirconia and Alumina Based Nanocomposites ", Scripta Mater., 44, 2075-2078, (2001)
4. Y. Sakka, T. S. Suzuki, T. Matsumoto, K. Morita, B.N. Kim, K. Hiraga and Y. Moriyoshi : "Low-Temperature and High-Strain Rate Superplastic Zirconia, ", Adv. Eng. Mater., 5[3], (2003), in press

6) 主要雑誌への研究成果発表

Journal	Impact Factor	サブテーマ1	サブテーマ2	合計	第 期
Nature	30.432	0	0	0	1
Phys. Rev. Lett.	7.323	1	0	1	1
J. Am. Chem. Soc.	6.201	0	1	1	0
Appl. Phys. Lett.	4.207	8	1	9	9
Chem. Mater.	3.967	1	1	2	0
J. Phys. Chem. B	3.611	1	0	1	1
Phys. Rev. B	3.327	6	0	6	0
Langmuir	3.248	0	0	0	4
Carbon	3.048	0	1	1	0
J. Chem. Phys.	2.998	0	3	3	1
J. Phys. Chem. A	2.765	0	1	1	0
Chem. Phys. Lett.	2.526	1	0	1	0
Phys. Rev. E	2.397	0	1	1	3
J. Electrochem. Soc.	2.330	4	0	4	8
J. Appl. Phys.	2.281	11	1	12	11
Mater. Trans. JIM	1.823	0	1	1	0
Plasma Sources Sci. Tech.	1.816	2	0	2	0
J. Am. Ceram. Soc.	1.796	2	8	10	5
Solid State Ionics	1.768	5	1	6	9
Pure Appl. Chem.	1.750	1	0	1	0
J. Solid State Chem.	1.671	0	0	0	1
J. Phys. Soc. Jpn	1.596	1	0	1	0
J. Mater. Res.	1.530	0	2	2	3
J. Crystal Growth	1.529	15	0	15	14
Chem. Lett.	1.529	0	2	2	1
J. Colloid Interface Sci.	1.466	0	0	0	1
Thin Solid Films	1.443	12	0	12	3
Corros. Sci.	1.442	0	2	2	0
Rev. Sci. Instr.	1.437	2	0	2	0
J. Non-Cryst. Solid	1.435	0	0	0	1
J. Phys. D	1.366	3	0	3	6
J. Electron Spectrosc.	1.317	2	0	2	0
J. Accoust. Soc. Am.	1.310	0	1	1	0
Appl. Surface Sci.	1.295	7	0	7	7
Plasma Chem. Plasma Process.	1.292	2	0	2	0
Jpn. J. Appl. Phys.	1.280	2	7	9	18
Surf. Coat. Tech.	1.267	1	0	1	0
IEEE Trans. Appl. Supercon.	1.266	0	1	1	0
以上、Impact Factor が1以上の雑誌掲載数の合計		101	47	148	111