

超ハイブリッド材料技術開発  
(中間評価)分科会  
資料5-1-1

# 「超ハイブリッド材料技術開発」

## 事業原簿 (公開版)

担当部	独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 ナノテクノロジー・材料技術開発部
-----	---

# 目次

## 概要

プログラム・プロジェクト基本計画

技術戦略マップ

プロジェクト用語集

## I. 事業の位置付け・必要性について

1. NEDO の関与の必要性・制度への適合性 . . . . . I - 1
  1. 1 NEDO が関与することの意義
  1. 2 実施の効果（費用対効果）
2. 事業の背景・目的・位置づけ . . . . . I - 3
  2. 1 事業の背景
  2. 2 事業の目的及び意義
  2. 3 事業の位置付け

## II. 研究開発マネジメントについて

1. 事業の目標 . . . . . II - 1
2. 事業の計画内容 . . . . . II - 1
  2. 1 研究開発の内容及び全体スケジュールと予算
  2. 2 研究開発の実施体制
  2. 3 研究の運営管理
3. 情勢変化への対応 . . . . . II - 1 7

## III. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果 . . . . . III - 1 - 1
2. 研究開発項目毎の成果（(財)化学技術戦略推進機構・(独)産業技術総合研究所）
  2. 1 概要 . . . . . III - 2 - 1
  2. 2 ②相反機能発現基盤技術開発 . . . . . III - 2 - 7
  2. 3 ③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発 . . . . . III - 2 - 1 6
  2. 4 ④材料設計に資する統合評価・支援技術開発 . . . . . III - 2 - 2 1
  2. 5 ①超ハイブリッド材料創製技術開発 . . . . . III - 2 - 5 3
3. 研究開発項目毎の成果（三菱化学(株)・(独)産業技術総合研究所）
  3. 1 概要 . . . . . III - 3 - 1
  3. 2 ②相反機能発現基盤技術開発 . . . . . III - 3 - 8
  3. 3 ③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発 . . . . . III - 3 - 1 8

3. 4	④材料設計に資する統合評価・支援技術開発	III-3-25
3. 5	①超ハイブリッド材料創製技術開発	III-3-42

4. 研究開発項目毎の成果 (東レ・ダウコーニング (株))

4. 1	概要	III-4-1
4. 2	③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発	III-4-1
4. 3	①超ハイブリッド材料創製技術開発	III-4-6

IV. 実用化の見通しについて

1.	実用化見通し	IV-1-1
1. 1	(財) 化学技術戦略推進機構	IV-1-1
1. 2	三菱化学 (株)	IV-1-8
1. 3	東レ・ダウコーニング (株)	IV-1-12

V. 成果資料

1.	各種展示会での成果の発表	V-1
2.	新聞、雑誌記事	V-3
3.	論文リスト	V-3
4.	口頭発表リスト	V-20
5.	特許	V-49
6.	受賞	V-53

VI.	参考文献	VI-1
-----	------	------

概要

		最終更新日	平成21年6月25日
プログラム(又は施策)名	ナノテク・部材イノベーションプログラム		
プロジェクト名	超ハイブリッド材料技術開発	プロジェクト番号	P08022
担当推進部/担当者	ナノテクノロジー・材料技術開発部 担当者氏名 田谷昌人(平成21年6月現在) ナノテクノロジー・材料技術開発部 担当者氏名 小林和仁(平成20年4月~平成21年3月) 経済産業省 製造産業局 化学課(平成19年4月~平成20年3月)		
0. 事業の概要	<p>従来実現が不可能と考えられていた相反する複数機能(トレードオフ機能)を両立できる材料を、異種素材の組合せ(ハイブリッド化)により実現するための技術を開発する。</p> <p>要素技術として、異種材料間の界面挙動の制御と最適化により、ナノレベルよりもさらに微小な原子・分子レベルでのハイブリッド化構造・配列制御のための合成技術を開発する。従来の単一材料では実現困難であったトレードオフの性能を引き出すことで、電気・電子材料、光学材料等を出口イメージとした、高機能革新部材製造に必要な技術基盤を開発する。</p> <p>ユーザーニーズに対応した総合的機能を発現し得る異種素材のハイブリッド化を設計、提案できる能力養成プログラムを研究開発プロジェクト実施と並行して実施することにより、我が国材料産業の人材育成にもつなげる。</p>		
I. 事業の位置付け・必要性について	<p>1. 事業の位置付け</p> <p>本プロジェクトは、『情報通信、ライフサイエンス、環境、エネルギーなどあらゆる分野に対して高度化あるいは不連続な革新(ジャンプアップ)をもたらすナノテクノロジー及び革新的部材技術を確立するとともに、その実用化や市場化を促進することで、我が国産業の国際競争力の維持・強化や解決困難な社会的課題の克服等を可能にすること』を目的とした「ナノテク・部材イノベーションプログラム」の一環として取り組むものである(図3-1)。極めて広範囲な産業領域に波及する材料・部材領域について、ユーザー製造業等との連携(川上・川下連携)を促進するプロジェクト体制(垂直連携)で実施することで、高度な部材産業群の「すり合わせ力」を一層強化する。</p> <p>2. 必要性</p> <p>我が国の材料産業は、国際的に高い技術力と競争力を有し、経済社会の発展を支えている。しかし、川下産業との取引のオープンに伴いユーザーとの連携の希薄化が進行する一方で、汎用的な材料技術はアジア諸国の技術力向上によるキャッチアップが進行している。そのため我が国において産学官を含む連携の強化(川上川下の垂直連携、材料創製と加工の水平連携など)を図ることと、次世代の材料分野での高付加価値化に資する高度な技術開発が、今後のイノベーション促進に必要な不可欠な課題となっている。すなわち、材料技術の高度化・高付加価値が、国際競争力を強化し、新たな市場や雇用を創出する厳選として期待されている。</p> <p>材料産業の急速な発展を背景に、部材分野における半導体関連部材(パワーデバイス材料)、光学部材(空間光制御部材)、ディスプレイ部材(低屈折率材料)などの位置付けられる有機・無機ハイブリッド材料は大幅な性能向上が期待されている。しかしながら、有機材料に無機材料を混ぜていくと、無機材料の性質が付加されるものの、有機材料の長所が失われる。したがって、単なるハイブリッド化ではなく、従来材料ではなし得なかったトレードオフ(相反機能)をナノレベルでの制御・実現する難易度の高い技術開発が必要である。また、産業界の強いニーズである新規製品・サービスを創造するためには、従来の試行錯誤的な材料開発手法ではリソースの投資効率鈍化やエネルギーや環境への負荷増大が避けられなかった。</p> <p>この背景、理由により民間投資のみに任せるのではなく、NEDOにて産学の科学的知見、研究開発力を結集して、新しいパラダイムに基づく、有機・無機ハイブリッド材料の開発を推進し、これを産業技術へ繋げていくと共に、社会の共通基盤として情報の整備、提供を通じて科学的知見の基づいた正確かつ適切な認識の醸成を図る事業方針に基づき、国家的、集中的プロジェクト実施が必要である。</p>		

II. 研究開発マネジメントについて

①超ハイブリッド材料創製技術、②相反機能発現基盤技術、③相反機能材料創製プロセス基盤技術、④材料設計に資する総合評価・支援技術の4技術を確立し、これまでにない相反機能の両立を可能にした超ハイブリッド材料を実現し、我が国材料産業発展に大きく貢献する。

以下、最終目標（平成23年度末）の概要を記載する。

① 超ハイブリッド材料創製技術開発

研究開発項目②相反機能発現基盤技術開発、研究開発項目③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発、研究開発項目④材料設計に資する総合評価・支援技術開発の成果をもとに、具体的ないくつかの部材について従来材料では実現できなかったトレードオフを解消するとともに、市場評価が可能な成果物を供試し、市場（ユーザー）から、客観的実用化研究課題を抽出する。また、単なる相反機能の解消ではなく、相反機能を制御・実現する技術を開発する。

② 相反機能発現基盤技術開発

従来材料では実現できなかったトレードオフを解消するため、相反機能発現に必要な界面制御、分散、配向制御等の基盤技術を開発・確立する。

③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

官能基導入ナノ粒子等の高効率合成プロセス及び均一分散・配向・配列プロセス基盤技術を開発し、これらプロセスが連動した相反機能材料創製プロセス基盤技術を開発・確立する。

④ 材料設計に資する総合評価・支援技術開発

相反機能を発現する、材料・部材の基本構造の特性解析及び設計に関する総合評価・支援技術を開発・確立する。

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」

[中間目標（平成21年度末）]

(I) 電気・電子材料分野

[1] パワーデバイス周辺材料（モーター、自動車電装品）

熱伝導率 $\geq 3.0$  W/mK、耐熱性 $\geq 300$  °C、絶縁破壊電圧 $\geq 3.0$  kV/mm、易成型性であること。

[2] ICパッケージ周辺材料（熱伝導材料、封止材）

〈非絶縁タイプ〉熱伝導率 $\geq 4.0$  W/mK、

接着強度（熱サイクル1000回後） $\geq 1$  MPa (at 260°C)

〈絶縁タイプ〉熱伝導率 $\geq 7.0$  W/mK、体積抵抗率 $\geq 10^{11}$   $\Omega \cdot \text{cm}$  (at 150°C)、

接着強度（熱サイクル1000回後） $\geq 1$  MPa (at 260°C)

[3] 高放熱性材料

熱抵抗値 $\leq 0.03$  °C $\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ （厚さ10–100  $\mu\text{m}$ ）、硬化前粘度 $\leq 200$  Pa $\cdot\text{s}$

[4] 高耐熱材料

貯蔵弾性率の低下率（室温と300°Cでの値の比較） $\leq 10\%$

熱膨張係数 $\leq 2.0 \times 10^{-6}$  K $^{-1}$ 、硬化前粘度 $\leq 200$  Pa $\cdot\text{s}$

(II) 光学材料分野

[1] 低屈折率材料（機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、光導波路）

屈折率 $\leq 1.42$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3$ H、全光線透過率 $\geq 90\%$

易成型性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10$  g/10min

[2] 高屈折率材料（機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、レンズ）

屈折率 $\geq 1.6$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3$ H、全光線透過率 $\geq 90\%$

易成型性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10$  g/10min

(III) その他工業材料分野

[1] 放熱性材料（液晶画面用LED放熱用、燃料電池車・ロボット駆動部放熱用）

熱伝導率 $\geq 2.0$  W/mK、成形粘度 $\leq 1000$  Pa $\cdot\text{s}$ 、耐衝撃性 $\geq 15$  J/m、

比重 $\leq 3.5$ 、体積抵抗率 $\geq 10^{12}$   $\Omega \cdot \text{cm}$ 。

市場評価可能とする成果物の供試

上記の目標達成を客観的に判断できるように、市場評価が可能な条件（形態・数量）を明らかにし、成果物を供試する。市場評価を受けて、実用化するための課題を客観的に抽出する。

[最終目標（平成23年度末）]

(I) 電気・電子材料分野

[1] パワーデバイス周辺材料（モーター、自動車電装品）

熱伝導率 $\geq 4.0$  W/mK、耐熱性 $\geq 400$  °C、絶縁破壊電圧 $\geq 5.0$  kV/mm、易成型性であること。

[2] ICパッケージ周辺材料（熱伝導材料、封止材）

〈非絶縁タイプ〉熱伝導率 $\geq 6.0$  W/mK、

接着強度（熱サイクル1000回後） $\geq 1$  MPa (at 260°C)

〈絶縁タイプ〉熱伝導率 $\geq 15.0$  W/mK、体積抵抗率 $\geq 10^{11}$   $\Omega \cdot \text{cm}$  (at 150°C)、

接着強度（熱サイクル1000回後） $\geq 1$  MPa (at 260°C)

事業の目標

事業の目標	<p>[3]高放熱性材料 熱抵抗値<math>\leq 0.01^{\circ}\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}</math> (厚さ<math>10\text{--}100\mu\text{m}</math>)、硬化前粘度<math>\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p> <p>[4]高耐熱材料 貯蔵弾性率の低下率(室温と<math>300^{\circ}\text{C}</math>での値の比較)<math>\leq 10\%</math> 熱膨張係数<math>\leq 1.5\times 10^{-6}\text{K}^{-1}</math>、硬化前粘度<math>\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p> <p>(II)光学材料分野</p> <p>[1]低屈折率材料(機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、光導波路) 屈折率<math>\leq 1.4</math>、鉛筆硬度(JIS K5600)<math>\geq 4\text{H}</math>、全光線透過率<math>\geq 90\%</math> 易成形性 MFR(メルトフローレイト JIS K7210)<math>\geq 10\text{g}/10\text{min}</math></p> <p>[2]高屈折率材料(機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、レンズ) 屈折率<math>\geq 1.7</math>、鉛筆硬度(JIS K5600)<math>\geq 3\text{H}</math>、全光線透過率<math>\geq 90\%</math> 易成形性 MFR(メルトフローレイト JIS K7210)<math>\geq 10\text{g}/10\text{min}</math></p> <p>(III)その他工業材料分野</p> <p>[1]放熱性材料(液晶画面用LED放熱用、燃料電池車・ロボット駆動部放熱用) 熱伝導率<math>\geq 40\text{W}/\text{mK}</math>、成形粘度<math>\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}</math>、耐衝撃性<math>\geq 24\text{J}/\text{m}</math>、 比重<math>\leq 2.5</math>、体積抵抗率<math>\geq 10^{12}\Omega\cdot\text{cm}</math>。</p> <p>市場評価可能とする成果物の供試 上記の目標達成を客観的に判断できるように、市場評価が可能な条件(形態・数量)を明らかにし、 成果物を供試する。市場評価を受けて、実用化するための課題を客観的に抽出する。</p> <p>研究開発項目② 「相反機能発現基盤技術開発」 [中間目標(平成21年度末)] 研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能の発現手法を 提供し、中間目標達成に寄与する。 [最終目標(平成23年度末)] 研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標に達成する相反機能の発現機構 を明らかにし、それに基づき相反機能発現材料のナノ空間・構造制御手法を確立する。</p> <p>研究開発項目③ 「相反機能材料創製プロセス基盤技術開発」 [中間目標(平成21年度末)] 研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能の発現する材 料を合成するプロセス技術を提供し、成果物を供試し、中間目標達成に寄与する。 [最終目標(平成23年度末)] 研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標に達成する相反機能の発現する 材料を合成するプロセスを確立する。</p> <p>研究開発項目④ 「材料設計に資する統合評価・支援技術開発」 [最終目標(平成23年度末)] 相反機能材料の表面・界面、バルク・深さ方向の構造及び状態をナノレベルまでの分解能で複合的・ 多元的に解明できる計測手法を構築する。得られた計測結果に開発部材の機能評価、相反機能発現・ 相反機能材料創製過程における評価から得られる分解能、雰囲気などが異なる階層的なデータを統 合、情報科学的に処理し、機能発現に関わる経験則などの新しい知識体系として取り出すための手 法を開発する。得られた結果を超ハイブリッド材料の設計に反映させる</p>
-------	--

事業の計画内容	主な実施事項	H 1 9	H 2 0	H 2 1	H 2 2	総額
	①超ハイブリッド材料創製技開発	353	222	136		828
	②相反機能発現基盤技術開発	159	109	68		364
	③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発	155	208	230		605
	④材料設計に資する統合評価・支援技術開発	133	81	66		280
	その他					
開発予算 (会計・勘定別に事業費の実績額を記載) (単位：百万円)	会計・勘定	H 1 9	H 2 0	H 2 1	H 2 2	総額
	一般会計	800	620	500		1920
	特別会計 (一般・電源・需給の別)	0	0	0		0
	加速予算 (成果普及費を含む)	0	97	0		97
	総予算額	800	717	500		2017
開発体制	経産省担当原課	産業製造局化学課				
	プロジェクトリーダー	国立大学法人 東北大学 多元物質科学研究所 教授 阿尻雅文				
	委託先(*委託先が管理法人の場合は参加企業数および参加企業名も記載)	東北大学、東京工業大学、長岡技術科学大学、九州大学、(独)産業技術総合研究所、(財)化学技術戦略推進機構、日東電工(株)、日立化成工業(株)、電気化学工業(株)、住友ベークライト(株)、日本油脂(株)、新日鐵化学(株)、住友大阪セメント(株)、(株)アイアテック、(株)戸田工業三菱化学(株)(大阪大学、関西大学、大阪市立工業研究所、油化電子(株))東レ・ダウコーニング(株)(東京大学)				
情勢変化への対応	進捗状況や技術推進委員会の結果をふまえ、当該技術分野における国際競争上の優位性が確立できることが期待されるテーマに関して、研究加速財源の配分を行った。					
評価に関する事項	事前評価	18年度 実施 担当 経済産業省 産業技術環境局 研究開発課				
	中間評価	21年度 中間評価実施				
	事後評価	24年度 事後評価実施(予定)				

①超ハイブリッド材料創製技術

目 標	研究開発成果	達成度
<b>電気・電子材料分野</b> <b>パワーデバイス周辺材料</b> (1) 熱伝導率 中間目標値 30W/mK 最終目標値 40W/mK (2) 耐熱性 中間目標値 300°C 最終目標値 400°C (3) 絶縁破壊電圧 中間目標値 30kV/mm 最終目標値 50kV/mm (4) 成形性 易成形性	超臨界法による、粒子表面改質で高充填化、および相分離構造等による熱伝導パスの形成で、35W/mKを得た。 更なる高熱伝導性フィラーの適用や高充填化、構造制御による熱伝導パス形成を進める。 現有樹脂にて達成。 耐熱性ポリマーを探索・適応予定。 現状25kV/mmを得た。プロセス改良により更に向上予定。 樹脂とフィラー間の特性差を極小にする表面改質技術とプロセス改良により向上させる。 表面改質フィラーにより、高充填でも粘度の上昇を抑え流動性を確保できた。	達成 達成 達成見込み 2010・3 達成
<b>ICパッケージ周辺材料 封止材</b> (1) 熱伝導率 中間目標値 7W/mK 最終目標値 15W/mK (2) 密着強度 中間目標値 1Mpa 最終目標値 1Mpa (3) 体積抵抗率 中間目標値 $10^{11}\Omega\text{cm}$ 最終目標値 $10^{11}\Omega\text{cm}$ ICパッケージ周辺材料 接着剤 (1) 熱伝導率 中間目標値 40W/mK 最終目標値 60W/mK (2) 密着強度 中間目標値 1Mpa 最終目標値 1Mpa	現在6W/mKを達成。表面修飾フィラーによる粘度低減効果で、高充填化ができ熱伝導率向上可能。 高熱伝導フィラーの採用と、表面改質による界面抵抗低下で更に熱伝導率を向上させる。 260°Cの条件にて、6Mpaを達成。 熱伝導率向上とのトレードオフ解消技術を開発継続する。 $10^{14}\Omega\text{cm}$ を達成した。 他の高熱伝導フィラー併用時の低下抑制技術を開発す 38W/mKを得ている。若干の高充填化により達成可能。表面修飾フィラーの配合率、プロセス最適化により達成予定。 260°C4Mpaを達成。 フィラーの高充填化による低下を防止技術を開発。	達成見込み 2009・12 達成 達成 達成見込み 2009・10 達成
<b>高放熱性材料技術開発</b> 中間目標 1) 熱抵抗値 $\leq 0.03^\circ\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ 2) 硬化前粘度 $\leq 200\text{Pa}\cdot\text{s}$ 最終目標 1) 熱抵抗値 $\leq 0.01^\circ\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ 2) 硬化前粘度 $\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}$	1) $0.79^\circ\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ 2) $800\text{Pa}\cdot\text{s}$	1) 未達 2) 未達 東京大学での基盤技術の結果を反映して材料化開始予定)
<b>高耐熱性材料技術開発</b> 中間目標 (1) 貯蔵弾性率の低下率 $\leq 10\%$ (2) 熱膨張係数 $\leq 2.0 \times 10^{-5}\text{K}^{-1}$ (3) 硬化前粘度 $\leq 200\text{Pa}\cdot\text{s}$ 最終目標 (1) 貯蔵弾性率の低下率 $\leq 10\%$ (2) 熱膨張係数 $\leq 1.5 \times 10^{-5}\text{K}^{-1}$ 、 (3) 硬化前粘度 $\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}$ (4) 成果物の供試	1) 76% 2) $5.0 \times 10^{-5}\text{K}^{-1}$ 3) $41\text{Pa}\cdot\text{s}$ 粘度の値を多少犠牲にし、ポリシロキサン成分の架橋密度を増加させることにより熱膨張係数、弾性率低下率を大きく低下させることは可能 (4) 供試した	(1) 達成見込み (2010年3月) (2) 達成見込み (2010年3月) (3) 達成 (3) 達成

Ⅲ. 研究開発成果について





	目 標	研究開発成果	達成度
Ⅲ. 研究開発成果について	<b>ナノ構造制御</b> <b>ナノ粒子表面の有機修飾</b> メカニカル分散による表面修飾法開発 2段重合法への適応性向上	会合チタニアナノ粒子を少量の表面改質剤で高濃度、透明な分散液として得ることに成功。高屈折光学材料開発へ提供した。	達成
	前駆体法による金属/無機ナノ粒子分散薄膜材料開発 ビルドアップ法による金属ナノ粒子の樹脂薄膜中への均一分散と2重パーコレーション構造の最適化	金属ナノ粒子との親和性を制御したポリイミド前駆体構造の設計合成を行った。 マイクロ相分離した高分子薄膜中の親和性部位に金属銀ナノ粒子の偏析に成功した。マイクロ相分離構造については熱伝導パス形成にも有効な技術手段として提供。	達成 達成
	<b>ナノ空間・構造制御手法最適化技術</b> <b>表面修飾ナノ粒子と媒体との相互作用評価</b> 表面修飾ナノ粒子の分散性の定量的評価と相図の作成 パターン基板と表面修飾モデル粒子との相互作用解析による分散因子検証	ナノ粒子系熱力学(相平衡・相分離構造)の確立を目指し開発を進めた。表面改質粒子の有機溶剤中の分散安定化について、溶解度パラメーターを用いた傾向を把握した。 親水・疎水パターン基板の設計作成完了。モデル粒子の特性解析を行った。	達成 達成
	<b>マイクロ相分離による材料開発及びIn-situ光学測定法</b>  マイクロ相分離構造の生成条件の探索と制御 高分子複合系における配向構造制御基盤技術確立	2種のポリイミドを用いたマイクロ相分離構造形成に成功した。またIn-situ観察としての光学計測定法を確立した。延伸速度等の条件にて、構造の制御が可能となってきた。熱伝導材料特に熱伝導パス形成への基盤技術として提供する。	達成
	<b>絶縁性と高熱伝導性を有する無機材料の開発</b> a) BNナノ粒子、BNナノシートの合成条件確立。 b) 表面修飾可能な非酸化物無機ナノ材料を開発。 c) 電気絶縁表面被覆法の開発。	a) 高結晶高純度BNナノシートの合成に成功。 b) Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> ナノワイヤー合成に成功。 c) Agナノロッド、Auナノシートの合成に成功。AgナノロッドのTi(iOPr) <sub>4</sub> 絶縁被覆に成功。	達成見込み(平成21年3月)
	<b>液晶性エポキシ樹脂の開発</b> a) 高熱伝導で力学延伸や磁場配向に適した液晶性エポキシ樹脂の開発・合成を行う。	・ドメイン高配向が可能な主鎖にターフェニル骨格を有する液晶エポキシの合成に成功。  ・高配向と易成形性が期待されるターフェニル型ツインメソゲンエポキシの合成にも着手、高重合度のエポキシモノマー含有で液晶性発現を見出す。	達成
<b>無機材料の表面修飾技術開発</b> a) 無機ナノ粒子表面への官能基導入手法確立。	・BN粒子表面へのエポキシ基含有鎖の導入条件確立。  ・BN粒子表面修飾により粘度低下、力学強度(引張剪断強度)向上、熱伝導率向上を確認。	達成	

③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<b>官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術</b> 1; 超臨界法を用いた表面修飾粒子の効率的な形成プロセスの構築。 2; 高速大量に形成した表面修飾粒子の材料創製技術への提供。 3; 実用化に向けたスケールアップ10t/年能力の構築 4; 安定性、再現性、生産性を満足したトータルシステムとしての構築。	・ 超臨界法によるナノ粒子合成基盤技術開発0.1t/年能力装置完成 流通式装置を開発すると共に、合成時の課題を装置開発ヘフィードバックを行った。1t/年能力装置システム化H21 完成 ・ 超臨界水熱合成装置の開発  ・ 流通式装置のスケールアップに関連する必要な装置を開発実行し、中量規模の装置を完成させた。 ・ 超臨界水反応による高速大量表面修飾プロセス開発 表面修飾シリコニア粒子、チタニア粒子を形成し、光学材料開発へ提供した。BN粒子の表面改質も進めた。	達成

目 標	研究開発成果	達成度
<p><b>高分子中ナノ粒子等分散・配向・配列プロセス技術開発</b>  材料機能を向上させるために、樹脂中のフィラーを1次粒子レベルまで分散させ、液晶等の使用も考慮しながら光、磁場、電場、応力等の外力により樹脂中のフィラーを配向・配列させるプロセスを開発する。</p> <p><b>プロセス最適化</b></p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>高分子中ナノ粒子等分散・配向・配列プロセス基盤技術開発 <ul style="list-style-type: none"> <li>光、電場、磁場を用いた高分子中ナノ粒子の分散状態の制御を可能とする技術開発。液晶付与したチタニア粒子での磁場配向に成功。</li> </ul> </li> <li>液中レーザーを用いた銀ナノシート形成技術開発 <ul style="list-style-type: none"> <li>液中レーザー法によって厚さ30nmのナノシートの合成に成功した。開発したナノ秒パルス電源を用いBNナノシートの配向制御を可能とした。</li> </ul> </li> <li>延伸熱処理による無機ナノ粒子の配向・配列制御技術開発 <ul style="list-style-type: none"> <li>相分離挙動を示す高分子を用い銀ナノ粒子の偏析構造の形成に成功した。</li> </ul> </li> <li>プロセス最適化技術開発 <ul style="list-style-type: none"> <li>スケールアップ時の諸問題を解決するIn-situ観察として高速VTRを用い可視化に成功した。</li> <li>流れの可視化結果を踏まえた粒子形成シミュレーション技術により、超臨界装置混合部での渦の発生が認められ、粗大粒子や閉塞の原因となること判明した。</li> </ul> </li> </ul>	<p>達成</p>
<p><b>浸漬型ナノ被覆プロセス技術開発</b></p> <p>a) 液晶性エポキシ延伸紡糸の基礎検討と技術の見極め。  b) 塗布性や接着性の確認および熱伝導率の見極め。</p>	<p>a) 長さ378mのヒーターが必要(現実的に不可能)であること判明。  b) 熱伝導率の目標値100W/mKに対して20W/mK程度の結果となった。</p>	<p>平成20年度末で事業中止。  (理由)技術的難易度が非常に高いことを確認したため。</p>
<p><b>ハイブリッド材料成型ナノプロセス技術開発</b></p> <p>a) ハニカム構造による熱伝導性改善効果を確認する。  b) 市販材料を用い、成型プロセス側から高熱伝導性の検討を行う。  c) 磁場発生装置を用い液晶エポキシ樹脂の基礎検討を行う。</p>	<p>a) 表面修飾BN粒子被覆フェノール樹脂粒子のハニカム構造で熱伝導率2倍(35vol%時)。  b) 櫛型構造型体で熱伝導向制御の可能性を見出した。  c) 液晶エポキシ樹脂の熱特性を磁場配向により評価し、約2倍の高熱伝導率化を達成。</p>	<p>達成</p>
<p><b>官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術</b>  <b>シリカ系ハイブリッド</b></p> <p>1)ハイブリッド微粒子構造に対する合成条件依存性  2)粒子構造が材料物性に与える影響  <b>金属系ハイブリッド</b></p> <p>1)表面修飾剤、金属種の影響  2)合成手法が表面修飾、粒子径、金属酸化状態に及ぼす影響  3)流通式装置によるプロセス提案</p>	<p>1)表面修飾率が制御されたポリシロキサン修飾ナノ粒子の合成に成功  2)シリカナノ粒子を硬質ポリシロキサンに良分散させる技術提案</p> <p>1)エポキシシロキサンの高い表面修飾効果を確認  2)二段階加熱反応による表面修飾、酸化状態の制御を確認  3)流通式装置による製造のための要素技術を確立</p> <p>急速昇温を行う混合手法の最適化が、高温高圧水を用いた微粒子合成に広く重要であり、流体シミュレーションと組み合わせることにより、混合状態と粒子生成反応の関係性を明らかにし、一般的な設計指針を得る。</p>	<p>1) 達成  2) 達成  3) 達成見込み(2010年3月)</p>

Ⅲ. 研究開発成果について

④材料設計に資する統合評価・支援技術開発			
目 標	研究開発成果	達成度	
<b>材料構造の計測・解析</b> H23年度末の最終目標: 相反機能材料の表面・界面、バルク・深さ方向の構造及び状態をナノレベルまでの分解能で複合的・多元的に解明できる計測手法を構築する。 計測制御により得られた結果を超ハイブリッド材料の設計に反映させる。	<b>電気・電子材料分野</b> ・ TEMにより粒子表面が設計通り修飾されていることを確認。 ・ 未修飾粒子ではナノ空孔が深くまで発生しており、界面熱抵抗悪化の原因となることを指摘。	達成	
	<b>光学材料分野</b> ・ TEM、固体NMRにより粒子表面修飾、結合状態、粒子分散状態への影響を確認。粒子修飾の指針となるデータを提供。 ・ ナノ空孔と屈折率に相関。ナノ空孔の低減が屈折率低減の鍵となることを指摘。 ・ 他の手段では見えないナノ粒子の分散ゆらぎを確認。光線透過率低下を引き起こすことを指摘。 技術動向調査 ・ 特許情報を収集、解析し、プロジェクト内に提供。	達成	
	<b>計測データの統合解析</b> (材料機能インフォマティクス) H23年度末の最終目標: 本開発項目で得られた計測結果に開発部材の機能評価、相反機能発現・相反機能材料創製過程における評価得られる分解能、雰囲気などが異なる階層的なデータを統合、情報科学的に処理し、機能発現に関わる経験則などの新しい知識体系として取り出すための手法を開発する。	<b>解析技術環境整備</b> ・ 異種データを統合的に取り扱うための情報処理環境を整理。 多階層データ収集の選定指針とその統計処理アルゴリズムの開発 ・ データの質を高めるための超解像手法やゆらぎのミクロ、マイクロデータを統合解析する空間統計学(バリオグラム)を材料構造ゆらぎに初めて適応。 統合解析手法の整備の加速、統計的なデータ収集・解析を開始 熱物性データベースを統合処理、体系化のフレームワークとして試行導入し熱物性データなどを蓄積した。微視的解析では分子レベルでの考察を行い、理論限界を解析し熱物性測定実データから、巨視的評価解析を試行し、高次のゆらぎ特性に系を特徴づける情報が含まれる可能性を見出した。	達成見込み
	<b>超ハイブリッド材料における熱物性計測法の開発</b> a) 高熱伝導性ナノ粒子の薄膜、粒子-樹脂複合構造の熱物性評価手法を整備。 b) 熱物性データを材料開発へとフィードバック。	a) 熱物性分布計測技術の高度化を前倒しで着手した。 b) 周期スポット加熱放射測温法によりナノ粒子薄膜試料、ナノ粒子/樹脂繊維複合材料の熱物性評価を実施した。	達成

Ⅲ. 研究開発成果について

	投稿論文	「査読付き」 67件、「その他」 14件
	特 許	「出願済」 6件、「登録」 5件、「実施」 0件（うち国際出願0件）
	その他の外部発表 （プレス発表等）	「新聞発表」 4件、「雑誌等」 4件 「学会発表」 81件
IV. 実用化見通しについて	<p>電気・電子材料・その他工業材料についてはパワーデバイス用の放熱シート、封止材、接着材の実用化を目指す。適用可能製品としての市場規模としてパワー半導体が10兆円（2050）、照明用LEDが4000億円（2013）と予測されている。</p> <p>光学材料については反射防止材、LED用封止材、レンズ材料を目指す。反射防止関連で1350億円（2006）、LED用封止材240億円（2013）、レンズ関連20億円（2013）の市場規模である。</p>	
V. 基本計画に関する事項	作成時期	平成19年3月 経済産業省制定 平成20年3月 NEDO制定
	変更履歴	平成20年7月 改訂（イノベーションプログラム基本計画の制定により、「（1）研究開発の目的」の記載を改訂）



## ナノテク・部材イノベーションプログラム基本計画

### 1. 目的

このプログラムは、情報通信、ライフサイエンス、環境、エネルギーなど、あらゆる分野に対して高度化あるいは不連続な革新（ジャンプアップ）をもたらすナノテクノロジー及び革新的部材技術を確立するとともに、その実用化や市場化を促進することで、我が国産業の国際競争力の維持・強化や解決困難な社会的課題の克服等を可能とすることを目的とする。

### 2. 政策的位置付け

#### ○第 3 期科学技術基本計画（2006 年 3 月閣議決定）

- ・「ナノテクノロジー・材料分野」は、特に重点的に研究開発を推進すべき分野（重点推進 4 分野）の一つに指定されていて、優先的に資源配分することとされている。
- ・我が国の材料技術は、基礎研究から応用研究、素材、部材の実用化に至るまでの全ての段階において世界のトップレベルを堅持しており、我が国製造業の国際競争力の源泉となっている。

#### ○「イノベーション 25」（2007 年 6 月閣議決定）

- ・「ナノテクノロジー・材料分野」は、中長期的に取り組むべき課題として、「1. 生涯健康な社会形成」、「2. 安全・安心な社会形成」、「4. 世界的課題解決に貢献する社会形成」、及び「5. 世界に開かれた社会形成」の分野に位置付けられている。
- ・所要の措置を講じていくことが必要である事項として以下の点が指摘されている。
  - ・学際領域・融合領域における教育等人材育成、拠点形成
  - ・社会受容を促すための積極的な取り組み
  - ・知的財産確保のための戦略的な取り組み

#### ○「経済成長戦略大綱」（2006 年 7 月財政・経済一体改革会議）

- ・「我が国の国際競争力の強化」の取り組みとして、高度な部品・材料産業やモノ作り中小企業の強化が掲げられている。
- ・「技術戦略マップ」の活用等により、ユーザー企業との垂直連携による研究開発を推進することを通して、我が国経済発展の基盤である高品質、高性能な部品・材料産業の強化を図ることが今後の取組として記載されている。

#### ○「新産業創造戦略 2005」（2005 年 6 月経済産業省）

- ・部材分野は、新産業群の創出を支える共通基盤技術として位置づけられている。
- ・「高度部材・基盤産業」の集積を形成していることが、「ものづくり」に不可欠な基盤技術のネットワーク化を通じた現場レベルでの迅速かつ高度な摺り合わせを可能としており、我が国「ものづくり」の強みの源泉となっていると記載されている。

### 3. 達成目標

- ・世界に先駆けて、ナノテクノロジーを活用した非連続な技術革新を実現する。
- ・我が国部材産業の強みを更に強化することで、他国の追随を許さない競争優位を確保するとともに部材産業の付加価値の増大を図る。
- ・ナノテクノロジーや高機能部材の革新を先導することで、これら部材を活用した情報通信、ライフサイエンス、環境、エネルギーなどの幅広い産業の付加価値の増大を図る。
- ・希少金属などの資源制約の打破、圧倒的な省エネルギー社会の実現など、解決困難な社会的課題の克服を目指す。

### 4. 研究開発内容

[プロジェクト]

#### I. ナノテクノロジーの加速化領域

ナノテクノロジーを活用した不連続な技術革新を加速・促進する。

##### (1) 異分野異業種融合ナノテクチャレンジ（運営費交付金）

###### ①概要

革新的なナノテクノロジーを活用し、川上と川下の連携、異業種異分野の連携で行う部材開発に対して支援を行い、燃料電池、ロボット、情報家電、健康・福祉・機器・サービス、環境・エネルギー・機器・サービスの5分野に資するキーデバイスの実現を目指す。

###### ②技術目標及び達成時期

マテリアル・プロセス研究、加工・計測技術研究、昨今の環境意識向上に対応した研究、社会課題を解決するための基盤技術研究に加え、異分野等の融合研究を推進することにより、2011年度までにナノテクノロジーの産業化のための基盤的技術を確立し、実用化を図る。

###### ③研究開発期間

2007年度～2011年度

##### (2) ナノテク・先端部材実用化研究開発（運営費交付金）

###### ①概要

新産業創造戦略の趣旨に則り、革新的なナノテクノロジーを活用し、川上と川下の連携、異業種・異分野の連携で行うデバイス化開発の支援を行うため、

○ナノテクノロジー活用による材料・部材の高度化を図る先導的研究開発（ステージⅠ）

○ナノテクノロジー研究成果の部材等への課題設定型実用化により目指した開発支援（ステージⅡ）

について提案公募を実施する。

###### ②技術目標及び達成時期

2010年頃に想定される半導体微細加工の限界を克服するため、分子・原子を1つずつ制御し部品部材に組み上げる「ボトムアップ型」のナノテクノロジーなど革新的なナノテクノロジー等の活用により、情報家電・ロボット、燃料電池等新規産業5分野等において、従来の性能・効率を大幅に改善するナノテク・先端部材技術を開発し、我が



国が優位にあるナノテクノロジーを基盤とした国際的な産業競争力を強化することを目標とする。

③研究開発期間

2005年度～2011年度

## II. 情報通信領域

ナノテクノロジーや革新的部材開発技術を駆使して既存技術の微細化の壁を突破し、電子デバイス・光デバイスで世界をリードするとともに、高度化された製造技術の開発を行う。

### (1) ナノエレクトロニクス半導体新材料・新構造技術開発—うち新材料・新構造ナノ電子デバイス

#### ①概要

ナノエレクトロニクスは、ナノテクノロジーの最大の応用領域の一つであり、デジタル・デバイスのCMOS構造というアーキテクチャは、優れた工学概念である。また、これまでの半導体技術の微細化に基づく高集積化・高速化・低消費電力化の追求は、シリコン材料をベースとするプレーナ構造を基本とした微細加工プロセスの高度化にあった。

しかし、さらなる微細化によるデバイスのパフォーマンス向上は物理的限界に直面しつつあり、問題は、FETを、シリコン材料をベースとして作製することにより現出していると考えられる。

そのため、次世代の電子デバイスのために「シリコンで培った微細化技術やデバイス原理をこれまで同様に活用しながら、シリコンという材料の物理的限界を突破するための“新材料”や“新(デバイス)構造”を実現すること」、すなわち、「New Nano Materials/Structure on Silicon for “More Moore”」の半導体技術を、ナノテクノロジーを最大限に活用することによって研究開発を行い、将来の産業応用への目を見出していく取りかかりとする。

#### ②技術目標及び達成時期

2011年度までに、産業界が10年後を見据えた将来の電子デバイスを開発する際に、産業技術として活用できるかどうかの実現可能性を見極め、また技術シーズを確立する。

#### ③研究開発期間

2007年度～2011年度

### (2) ナノエレクトロニクス半導体新材料・新構造技術開発—うち窒化物系化合物半導体基板・エピタキシャル成長技術の開発(運営費交付金)(再掲)

#### ①概要

窒化物系化合物半導体は日本が強みを有し、パワーデバイス、高周波デバイス、発光デバイス等、今後のIT社会を支えとなることを期待されている分野である。しかし、既存のバルク単結晶基板成長技術やエピタキシャル成長技術では、従来の半導体では実現できない領域で動作可能なハイパワー、超高効率デバイス性能を十分に引き出すには至っていない。

これを突破するため、大学あるいは研究所を拠点に材料メーカー、デバイスメーカー、装置メーカー等が相互連携して、窒化物半導体の結晶欠陥低減技術やナノ構造作製技術等の革新を図り、これらデバイスの飛躍的な性能向上と消費電力削減の実現を図る。

#### ②技術目標及び達成時期

2011年度までに、次世代窒化物系半導体デバイスを実現する以下結晶作製技術を開発する。

##### 1) 基板技術 (GaN、AlNバルク結晶作製技術)

- ・口径2～4インチで高品質エピ成膜を可能とする低コストの単結晶基板作製技術の確立。

##### 2) エピ技術 (エピタキシャル成膜及び計測評価技術)

- ・低欠陥高品質エピ層を実現する成膜技術及び膜成長過程を計測評価する技術の確立。
- ・高出力かつ高安定動作可能なエピ層の実現
- ・高耐圧超高速な新しいデバイス構造の開発

#### ③研究開発期間

2007年度～2011年度

### (3) スピントロニクス不揮発性機能技術プロジェクト (運営費交付金)

#### ①概要

将来のエレクトロニクスにおいて中核的な基盤技術となり得るスピントロニクス技術 (電子の電荷ではなく、電子の自転＝「スピン」を利用する全く新しいエレクトロニクス技術) を確立するため、強磁性体ナノ構造体におけるスピンの制御・利用基盤技術を開発し、我が国が世界に誇るシーズ技術を核として、産学官の共同研究体制を構築し、将来の中核的エレクトロニクス技術における我が国の優位性の確保を図る。

#### ②技術目標及び達成時期

2010年度までに、超高集積で高速な不揮発性メモリとして期待されるスピンメモリのための基盤技術を確立する。また、新ストレージ・メモリデバイス、不揮発性スピン光機能素子、スピン能動素子等の新しい動作原理によるスピン新機能素子の実現のための基盤技術を確立する。

#### ③研究開発期間

2006年度～2010年度

### (4) 三次元光デバイス高効率製造技術 (運営費交付金)

#### ①概要

波面制御素子による空間光変調技術を確立し、ガラス中に三次元造形を高精度に一括形成できるプロセス技術を開発する。この技術を用いて、具体的な光デバイスを作製し、当該技術の有効性の確認と市場への早期参入のための基盤技術を確立する。

#### ②技術目標及び達成時期

2010年度までに波面制御素子による空間光変調技術を用いたフェムト秒レーザー照射技術等を確立し、高精度の光デバイスを高速に作製できるプロセス技術を開発する。

#### ③研究開発期間

2006年度～2010年度

(5) 次世代高度部材開発評価基盤の開発\* (運営費交付金) (再掲)

①概要

エネルギー需給構造の高度化を図る観点から行うものである。半導体産業分野で、集積回路の消費電力低減に必要な配線形成用各種材料等の開発のネックとなっているナノレベルでの材料間の相互影響を評価可能な統合部材開発支援ツールを開発する。これにより、集積回路の種類やデザインルールに応じて、配線形成用各種材料とプロセスの最適な組み合わせの提案技術(統合的材料ソリューション提案技術)を確立する。

②技術的目標及び達成時期

2008年度までに、半導体材料開発に貢献する材料評価基盤を構築するとともに、上記の統合的材料ソリューション提案技術を確立する。また、本プロジェクトを通して得られた基礎データ等については、プロジェクト実施期間中にデータを体系的に整理し、幅広く社会に提供を図る。

③研究開発期間

2006年度～2008年度

(6) 超フレキシブルディスプレイ部材技術開発\* (運営費交付金) (再掲)

①概要

エネルギー需給構造の高度化を図る観点から、製造工程等の省エネルギー化を実現するために行う。従来、表示デバイスの製造には、真空蒸着と高温下での焼成と、それに伴う排ガス排水処理が必須であった。これを、ロールtoロール方式に代替することで常圧、常温下での製造を実現し、フレキシブルな薄型ディスプレイを効率よく製造する。そのために、有機TFT材料およびコンタクトプリント技術等を開発する。

②技術的目標及び達成時期

2009年度までに、実用化に向けた実証のための巻き取り方式ディスプレイのプロトタイプを試作する。またフレキシブルデバイス材料開発に貢献する部材ならびに薄膜複合化技術を開発し、これらをパネル化するための実用化技術を確立する。

③研究開発期間

2006年度～2009年度

(7) 低損失オプティカル新機能部材技術開発\* (運営費交付金) (再掲)

①概要

エネルギー需給構造の高度化を図る観点から行うものであり、近接場光の原理・効果を用いた低損失オプティカル新機能部材技術を開発し、実用化の目処を得ることを目的とする。動作原理に近接場光を用いるオプティカル新機能部材は、従来の材料特性のみに依存した光学部品では不可能な機能・性能を発揮し、液晶プロジェクター・液晶ディスプレイなど情報家電の省エネルギー、高性能・高信頼化を図る上でのキーデバイスとなることが期待できる。

②技術目標及び達成時期

2010年度までに、共通基盤技術として、ナノ構造部材の設計・作製・評価技術を開発するとともに、ナノ構造部材に発現する近接場光の機能を動作原理とする低損失オプティカル新機能部材を検討し機能を確認する。

③研究開発期間

2006年度～2010年度

### Ⅲ. ライフサイエンス・健康・医療領域

ナノテクノロジーを駆使して初めて可能となる診断・治療により革新的な医療を実現する。

(1) 次世代DDS型悪性腫瘍治療システムの研究開発事業（運営費交付金）（再掲）

（深部治療に対応した次世代DDS型治療システムの研究開発事業）

①概要

DDSのさらなる裾野の拡大、及び早期実用化を目指し、様々な外部エネルギー（機器技術）と薬剤技術を組み合わせることにより、比較的人体の深部にある臓器（肺、消化器）等のがんを対象としたDDS型治療システムの開発を行う。

②技術目標及び達成時期

光線力学治療システムの前臨床試験の開始及び治療効果・安全性の検証と、超音波診断・治療システムの前臨床試験を可能とする薬剤及び装置の完成に関する開発を難治性がんの治療に向けて行う。

③研究開発期間

2006年度～2009年度

(2) 個別化医療実現のための技術融合バイオ診断技術開発（運営費交付金）（再掲）

①概要

我が国が有する微細加工技術・表面処理技術といったナノテク等の強みを活かし、染色体異常を高感度、高精度かつ迅速、安価で非コード領域までを検出するゲノムアレイや解析基盤技術開発を行うとともに、全自動解析システムの開発を行う。

②技術目標及び達成時期

2010年度までに、BAC（染色体の断片）を用いた非コード領域を含むゲノム全領域を検出できる高精度ゲノムアレイを開発する。さらに、臨床現場において、微量サンプル（数ナノグラム）から、12時間以内に染色体異常（増幅、欠失、コピー数多型等）を、低コストかつ定量性・再現性を確保して検出ができる自動染色体異常解析システムのプロトタイプを開発する。

③研究開発期間

2006年度～2010年度

(3) 分子イメージング機器研究開発プロジェクト（運営費交付金）（再掲）

(3-1) 生活習慣病超早期診断眼底イメージング機器研究開発プロジェクト

①概要

細小血管の分子レベルでの代謝機能を非侵襲で可視化する細胞代謝イメージングを実現し、代謝異常を細胞レベルで観察することにより、循環器系疾患等の早期の診断・治

療を図る。

②技術目標及び達成時期

2009年度までに、ナノテクノロジーを活用した光学基盤技術等を確立することにより、細胞やタンパク質レベルの組織診断を可能とする機器を開発する。

③研究開発期間

2005年度～2009年度

(3-2) 悪性腫瘍等治療支援分子イメージング機器研究開発プロジェクト

①概要

良性・悪性の区別も含めた腫瘍の超早期診断を実現するため、悪性腫瘍に特異的に反応する標的物質を利用することにより生体細胞の分子レベルの機能変化を抽出・検出できる機器の開発を行う。

②技術目標及び達成時期

2009年度までに、全身で3mm、局所で1mmの分解能を有する分子イメージング機器を開発する。

③研究開発期間

2005年度～2009年度

IV. エネルギー・資源・環境領域

ナノテクノロジーや革新的部材開発技術を駆使して、エネルギー・資源・環境等の社会的制約を克服すると同時に我が国の強みであるナノテク関連産業・部材産業の競争力を強化する。

(i) エネルギー制約の克服

(1) サステナブルハイパーコンポジット技術の開発（運営費交付金）（再掲）

①概要

炭素繊維複合材料は、軽量、高強度等の優れた特性を有している。従来の熱硬化性樹脂を用いた炭素繊維複合材料では成形性・加工性に乏しくリサイクルが困難であったため、熱可塑性樹脂を用いた炭素繊維複合材料（CFRP）の開発を行う。

②技術目標及び達成時期

2012年度までに、炭素繊維と熱可塑性樹脂との中間基材を開発し、熱可塑性CFRP加工技術を開発する。

③研究開発期間

2008年度～2012年度

(2) 革新的ガラス溶融プロセス技術開発（運営費交付金）（再掲）

①概要

プラズマ等による高温を利用し瞬時にガラス原料をガラス化することにより、極めて効率的にガラスを気中で溶融（インフライトメルティング法）し省エネに資する革新的ガラス溶融プロセス技術を開発する。

②技術目標及び達成時期

2012年度までに、インフライトメルティング法により原料を溶解する技術、カレットをガラス原料として利用するため高効率で加熱する技術、カレット融液とインフライトメルティング法による原料融液とを高速で混合する技術を開発する。

③研究開発期間

2008年度～2012年度

(3) 高温超電導電力ケーブル実証プロジェクト（運営費交付金）（再掲）

①概要

革新的な超電導送電技術を確立するため、工業生産プロセスで実用化レベルに達している高温超電導線材を活用し、実用化のための実証試験及び評価を行う。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、200MVA級の中間接続部を有した三心一括型高温超電導ケーブルを、冷却装置や保護装置などの付帯設備とともに66KV実系統に接続して、12ヶ月以上の長期連系試験を行うことによって総合的な安全性や信頼性を実証する。

③研究開発期間

2007年度～2011年度

(4) マルチセラミックス膜新断熱材料の開発（運営費交付金）（再掲）

①概要

住宅やビルなどの冷暖房における大幅な省エネを実現する画期的な断熱性能を示す壁および窓材料を、セラミックスのナノ多孔体構造やナノ羽毛状構造およびセラミックス・ポリマー複合化構造などからなるマルチセラミックス膜アセンブリ技術によって開発する。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、熱貫流率（熱の伝わりやすさ）が $0.3\text{W}/\text{m}^2\text{K}$ 以下、壁厚さ10mm程度の超断熱壁材料および熱貫流率が $0.4\text{W}/\text{m}^2\text{K}$ 以下、光（可視光）透過率が65%以上（Low-Eガラス使用）、ヘイズ率が1%以下の超断熱窓材料を実現する。

③研究開発期間

2007年度～2011年度

(5) カーボンナノチューブキャパシタ開発プロジェクト（運営費交付金）（再掲）

①概要

従来の活性炭電極では不可能な高出力かつ高エネルギー密度の電気二重層キャパシタを実現するため、高度に配向した長尺の単層カーボンナノチューブの大量合成技術を開発するとともに、これを用いたキャパシタ電極の開発を行う。

②技術目標及び達成時期

2010年度までに、単層カーボンナノチューブの高度配向技術及び大量生産技術を確立するとともに、キャパシタ製造技術を確立することで、 $20\text{Wh}/\text{Kg}$ の高エネルギー密度と耐久性を有する電気二重層キャパシタを開発する。

### ③研究開発期間

2006年度～2010年度

## (6) 発電プラント用超高純度金属材料の開発（運営費交付金）（再掲）

### ①概要

従来の金属材料と比べ耐食性、耐久性、加工性などの飛躍的な向上が期待できる超高純度金属材料の発電プラント部材としての実用化を目指し、低コスト・量産化製造プロセス、及び加工・溶接技術等の開発を行い、部材としての実用特性の評価・検証を行う。また、実用化に向けたフィージビリティ調査を行い経済性の評価等を実施するとともに、材料特性に関するデータベースの整備及びそれに必要な試験研究を行う。

### ②技術目標及び達成時期

2009年までに、不純物総量100ppm未満、溶解量数100kg以上の低コスト・量産化技術製造技術を開発するとともに、製造された超高純度材料が発電プラントの各種機器に適用でき、本材料の持つ優れた特性を長期に亘って発揮できることを確認する。

### ③研究開発期間

2005年度～2009年度

## (7) セラミックリアクター開発（運営費交付金）（再掲）

### ①概要

電気化学的に物質やエネルギーを高効率で変換する次世代型セラミックリアクターの実現のため、低温作動と急速作動停止を可能とする材料の開発とマイクロセルの集積構造化技術等の開発を行う。

### ②技術目標及び達成時期

2009年度までに、新電解質材料の適用や電極反応の高効率化等による、低温作動時（650℃以下）での出力性能を向上させる材料技術と共に、マイクロセルの集積構造化や精緻なインターフェース構築のための製造プロセス技術を開発。そして、これらの技術を統合することにより、次世代型セラミックリアクターとしてのプロトタイプモジュール実証（出力性能2kW/L等）を行う。

### ③研究開発期間

2005年度～2009年度

## (8) 高機能チタン合金創製プロセス技術開発プロジェクト（再掲）

### ①概要

大量の電力を必要とする従来のバッチ処理方式のチタン製錬法（クロール法）を、エネルギー効率の高い連続処理方式へ転換する抜本的なプロセス改善のための技術を開発する。また、併せて、成形性の高いチタン合金設計技術及び成形プロセス技術を開発する。

### ②技術目標及び達成時期

2008年度までに省エネ型チタン新製錬プロセスの基盤技術を開発し、2010年

までに実用化を目指す。また、本製錬技術により得られるチタンをベースとして、加工性、強度等をさらに向上させた合金設計・成形プロセス技術を確立する。

③研究開発期間

2005年度～2008年度

(ii) 資源制約の克服

(1) 希少金属代替材料開発プロジェクト（運営費交付金）

①概要

希少金属は、特殊用途において希少な機能を発揮する一方で、その希少性・偏在性・代替困難性から、市場メカニズムが必ずしもうまく機能せず、その供給停止は川下の経済成長の制約要因となり得るリスクを伴っている。近年、「コンピュータによる材料設計」、「ナノテクによる微細構造制御」等が飛躍的に向上した結果、従来出来なかった、「コンピュータによる最適制御設計による候補元素系の探索」、「結晶粒界、界面の制御等マイクロ構造の制御」等が可能となりつつあることから、こうした最先端技術を用いることで、希少金属の新たな代替／使用量低減技術を開発する。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、以下希少金属元素の使用原単位について現状と比較して以下の低減ができる製造技術を開発し、ユーザー企業、大学等の外部機関に対して機能評価のためにラボレベルで提供できる（試料提供）水準に至るまでの技術を確立することを目標とする。また、製品の機能や製造コストは現状と同等を少なくとも維持することを前提とする。

〔対象元素〕	〔使用原単位の低減目標値〕
・透明電極向けインジウム（In）	：現状から50%以上低減
・希土類磁石向けディスプロシウム（Dy）	：現状から30%以上低減
・超硬工具向けタングステン（W）	：現状から30%以上低減

③研究開発期間

2007年度～2011年度

(iii) 環境制約の克服

(1) グリーン・サステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発

①概要

化学品等の製造プロセスにおけるシンプル化、クリーン化、原材料・資源の多様化、更に、廃棄物の減容化、容易なりサイクル等を実現し、産業競争力強化、国際規制の先取りを図って、将来にわたっても持続的に化学品等を製造するための必要な新規なGSC（グリーン・サステイナブルケミストリー）プロセスを開発する。

②技術的目標及び達成時期

2015年度までに、有害な化学物質を大幅に削減、使わない革新的なプロセス及び化学品の開発や廃棄物、副生成物の大幅に削減できる革新的なプロセス及び化学品の開発を行う。

③研究開発期間



2008年度～2015年度

(2) 次世代高信頼性ガスセンサ技術開発 (運営費交付金) (再掲)

①概要

一酸化炭素中毒やガス漏れなどのガス事故を限りなくゼロに近づけるため、センサー素子のナノレベルでのメカニズム解析及び開発設計を行い、コードレスで高信頼性を有する次世代高信頼性ガスセンサー (COセンサー・メタンセンサー) を開発する。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、最先端のナノテクノロジー及びMEMS技術を導入し、電池駆動で5年以上の長寿命、高信頼性 (数百ppm以下の故障率)、低コストなCOとメタンのセンサーを開発する。

③研究開発期間

2008年度～2011年度

(3) 革新的膜分離技術の開発 (再掲)

①概要

河川水等の浄水工程における、微量の有害物質、微生物等の除去に係る水処理技術のうち、分離膜方式による高効率 (省エネ) な分離技術を開発する。

②技術目標及び達成時期

2012年度までに、ナノテクノロジー等新技術を用いて新素材を開発し、高度な水質制御と高速処理を兼ねた膜ろ過システムを開発する。

③研究開発期間

2008年度～2012年度

(4) 循環社会構築型光触媒産業創成プロジェクト (運営費交付金)

①概要

我が国で発見された光触媒技術の新産業分野開拓を目指し、サイエンスにさかのぼることにより、紫外光のみならず、可視光レベルでの性能・機能の飛躍的な向上のための技術基盤を構築する。これにより、従来では困難とされてきた医療関連分野や土壌処理、PFC処理/フッ素回収などの環境関連分野等に光触媒技術を導入し、光触媒の最大のメリットである自然エネルギーを利用した安心・安全な環境を提供できる技術を開発する。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、材料レベルで紫外光応答型2倍、可視光応答型10倍の感度向上を達成し、その高感度光触媒を適用した薄膜プロセス技術の基盤技術を確立する。

③研究開発期間

2007年度～2011年度

(5) 革新的マイクロ反応場利用部材技術開発\* (運営費交付金) (再掲)

①概要

エネルギー供給構造の高度化を図る観点から行うものであり、マイクロリアクター、ナノ空孔などの精密反応場を利用し、反応分子の自由な運動を活性種レベルで制御した革新的な化学反応プロセスと新機能材料創成技術の確立を目指す。さらに、マイクロリアクターとナノ空孔反応場の組み合わせ、各反応場とマイクロ波等のエネルギー供給手段との組み合わせにより協奏的反応場を構成し、さらなる高効率生産等を可能にする基盤技術を開発する。これらの技術の確立により、反応システムの小型化、多段プロセスの簡略化等を通じた化学産業の製造工程等の省エネルギー化を図る。

②技術的目標及び達成時期

2010年度までに、マイクロリアクター技術、ナノ空孔技術を軸とし、これらに更にマイクロ波、超臨界流体等のエネルギー供給手段を組み合わせた協奏的反応場を構成することにより、これまでにない革新的な化学反応プロセスを確立し、新機能材料創成技術を実現する。さらに、これらの技術を用いて高性能・高機能電子材料、医薬中間体などの部材を開発する。

③研究開発期間

2006年度～2010年度

(6) 高感度環境センサ部材開発\*

①概要

ダイオキシンをはじめとする微量有害有機物質を高感度・高選択・安価・迅速に計測するため、分子認識部位として生体分子を用い、有害有機物質の結合の有無・量を直接電気信号に変換するセラミックスセンシング材料（電極材料）を用いたセンサ部材を開発する。

②技術目標及び達成時期

2010年度までに、ダイオキシン類、エストラジオール及びビスフェノールAについて、0.001ng・mlの濃度において有意な電気信号として検出し得る小型・携帯型計測器に挿入可能な寸法のセンサ部材の開発を目標とする。

③研究開発期間

2006年度～2010年度

V. 材料・部材領域

極めて広範囲な産業領域に波及する材料・部材領域について、ユーザー製造業等との連携（川上・川下連携）を促進し、高度な部材産業群の「すり合わせ力」を一層強化する。

(1) 高機能複合化金属ガラスを用いた革新的部材技術開発（運営費交付金）

①概要

複合化金属ガラス（金属ガラスマトリックス中に第二相として微結晶や微粒子または微小空隙等を分散させたもの）を創製して、次世代高密度記録媒体、超微小モータ用部材および高強度・高導電性電気接点部材を開発する。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、複合化金属ガラス合金を創製し、従来の金属ガラス単層合金の持つ優れた特徴に加えて、塑性加工性、硬磁気特性、高電気伝導性等を付与する。この

複合化金属ガラスの新規特性を用いて、従来の金属ガラス単層合金では為しえなかった革新的部材の開発を行い、さらに多様な工業製品に応用することで、我が国産業の優位性を確保する。

③研究開発期間

2007年度～2011年度

(2) 超ハイブリッド部材技術開発（運営費交付金）

①概要

従来実現が不可能と考えられていた相反する複数機能（トレードオフ機能）を両立できる材料を、異種素材の組合せ（ハイブリッド化）により実現するための技術を開発する。要素技術として、異種材料間の界面挙動をシミュレーション技術等により解明し、ナノレベルよりもさらに微小な原子・分子レベルでのハイブリッド化構造・配列制御のための合成技術を開発する。従来の単一材料では実現困難であったトレードオフの性能を引き出すことで、自動車用構造材料、パワーデバイス用材料、光学材料等を出口イメージとした、高機能革新部材製造に必要な技術基盤を開発する。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、電気・電子材料、光学材料、その他工業材料について従来材料では実現できなかった相反機能を解消するとともに、市場評価が可能な成果物を供試し、市場（ユーザー）から、客観的な実用化研究開発課題を抽出する。また、単なる相反機能の解消ではなく、相反機能を制御・実現する技術を開発する。

③研究開発期間

2007年度～2011年度

(3) 鉄鋼材料の革新的高強度・高機能化基盤研究開発（運営費交付金）（再掲）

①概要

プラント、構造物や自動車等の革新的な高効率化、省エネルギー化、長寿命化、安全・安心化を図るため、最新の科学的知見を導入し、鉄鋼材料及び鋼構造体を超高機能化する基盤的研究開発を行う。具体的には、高強度鋼、高機能鋼の実用化拡大の基盤となる(1)高級鋼厚板(高強度鋼、極低温用鋼、耐熱鋼)溶接部の信頼性・寿命を大幅に向上する溶接施工技術(高密度・清浄熱源溶接技術)、及び金属組織制御技術を基本とする材料技術(クリープ破壊及び水素破壊の機構解明等を踏まえた)の開発、(2)部材の軽量化を図るために強度、加工性等の最適機能傾斜を付与する機械部品鍛造技術(駆動部材の信頼性確保のための耐疲労破壊特性の向上を踏まえた)の開発を行う。

②技術目標及び達成時期

2011年度までに、高級鋼厚板(高強度鋼・極低温用鋼・耐熱鋼)の溶接を予熱・後熱なしに可能とする溶接技術と材料技術を開発するとともに、傾斜機能部材の鍛造技術を開発する。

③研究開発期間

2007年度～2011年度

#### (4) マグネシウム鍛造部材技術開発プロジェクト\* (運営費交付金)

##### ①概要

マグネシウム合金部材について、製品歩留まりが高く、高耐疲労性を付与する鍛造技術の開発を行う。また、循環型素材としてのマグネシウム合金部材の特性を活かし、リサイクル材の鍛造用ビレット化に係る課題抽出を行う。当該技術開発により、マグネシウム鍛造部材製造技術の基盤を構築し、我が国の家電、自動車等の川下産業の競争力の強化に不可欠な高度部材を供給する。

##### ②技術目標及び達成時期

2010年度までに高強度・高耐疲労・加工性に優れたマグネシウム鍛造技術を確立する。

##### ③研究開発期間

2006年度～2010年度

#### (5) 先端機能発現型新構造繊維部材基盤技術の開発\* (運営費交付金)

##### ①概要

電界紡糸や熔融紡糸等により創製される極微細な繊維状材料に対してナノオーダーの成形加工や微細な界面加工ならびに複合化することで材料を高機能化した革新的部材を創出する。高機能新材料を求めるユーザーの要望を満たす繊維の極微細加工と高次複合化を解決する基盤技術開発を行う。

##### ②技術的目標及び達成時期

2010年度までに、電界紡糸法による繊維高機能化、大型装置化技術およびナノ熔融分散紡糸法による超極細炭素繊維製造技術を開発し、これら基盤技術を活用して、高性能・高機能電池用部材、高性能・高機能フィルター用部材、高性能・高機能医療衛生用・産業用部材を開発する。

##### ③研究開発期間

2006年度～2010年度

#### (6) 次世代光波制御材料・素子化技術\* (運営費交付金) (再掲)

##### ①概要

エネルギー需給構造の高度化を図る観点から行うものであり、ガラス材料に関する精密モールド技術を確立し、機能性の高い光波制御素子を低コストで生産できるプロセス技術を開発することで部材の小型化・高機能化を図りつつ、省エネを実現する。

##### ②技術目標及び達成時期

2010年度までにサブ波長レベルの微細構造をガラス表面にモールド成形する技術を実現し、実装可能な具体的なデバイスを作製する。

##### ③研究開発期間

2006年度～2010年度

## VI. ナノテクノロジー・部材分野推進共通基盤領域

ナノテクノロジー、部材分野の研究開発に必要な加工・計測・解析技術等の共通基盤の確

立とともに、信頼性、普遍性、安全性等のリスク不安に対処したリスク管理手法を開発し、社会に貢献する産業化の支援を相互的に推進する。

(1) ナノ粒子の特性評価手法開発（運営費交付金）

①概要

ナノ粒子のキャラクタリゼーション、計測技術の確立とともに、生体影響等評価手法、暴露評価手法及びナノテクノロジーによるリスク不安に対処したリスク管理手法を開発する。

②技術目標及び達成時期

2008年度までに、ナノ粒子のキャラクタリゼーション及び計測技術を確立するとともに、2010年までに、生体影響等評価手法、暴露評価手法及びリスク評価手法を開発し、ナノ材料のリスク評価指針及びナノ粒子の管理指針の提言を行う。

③研究開発期間

2006年度～2010年度

(2) 高度分析機器開発実用化プロジェクト\*（再掲）

①概要

燃料電池・情報家電・ナノテクといった先端新産業において、材料解析・性能評価・品質管理等で必要とされる超微量・超低濃度試料の分析技術の開発を行う。これら産業化の各フェーズに適した分析技術を開発することにより、先端新産業の事業化や製品の高付加価値化を図る。

②技術目標及び達成時期

2008年度までに希ガスイオン源を搭載した集束イオンビームの開発、低加速・高分解能・高感度の元素分析用顕微鏡の開発、超微量試料用分離・分析技術の開発を行う。

③研究開発期間

2006年度～2008年度

注：\*印のある研究開発プロジェクトは2006年度より開始された新産業創造高度部材基盤技術開発の一環として実施しているもの。

## 5. 政策目標の実現に向けた環境整備（関連施策）

ナノテクノロジーは、情報通信、環境、エネルギーなどの分野における科学技術の進歩や課題解決に貢献する重要な技術シーズである。そのため、ナノテクノロジーの研究開発と一体となった関連施策を実施することで、その成果を市場に出していくことが重要である。主な関連施策を、以下に示す。

### 〔技術戦略マップ〕

- ・NEDO及び経済産業省では、技術戦略マップを策定、毎年改訂し、ナノテク・部材分野の将来の方向性を見定めながら、合理的かつ効果的な研究開発プロジェクトを推進しているところ。また、技術戦略マップを活用して、多様な連携（川上川下の垂直連携、異業種間の水平連携など）による研究開発を促進、支援し、当該分野の技術革新を促進する。

### 〔サンプル提供・実用化促進〕

- ・NEDOでは、実施するナノテクノロジー関連の研究開発プロジェクト成果のサンプルを対象として、それらを活用した用途の開発、実用化ないし製品化提案を有する企業とのマッチングを図ることで、プロジェクトの事業化を促進する取組みを実施しているところ。

### 〔基準・標準化〕

- ・ナノテクノロジーの標準化については、研究開発プロジェクトを推進する上で、適切な活動（国際規格ISO/IEC、日本工業規格JIS、その他）を実施し、我が国のナノテクノロジー分野の研究開発、産業活動の効率向上を図り、研究開発の成果が社会で普及する環境を整備する意味でも重要である。これまでの主な取組みについては、下記のとおり。
- ・2005年5月にナノテクノロジーの標準化に向けてISO/TC229の設立がされ、「用語と命名法」、「計測とキャラクタリゼーション」、「健康・安全・環境」の3つのWGにおいて、国際標準化の策定に向けて議論が開始された。
- ・また、2007年6月にシンガポールで開催された第5回総会以降、「材料規格」の分科会の設立に向けて対応しているところ。
- ・さらに、2006年9月にはナノテクノロジーに関する電気電子技術の標準化に向けてIEC/TC113が設立され、「用語と命名法※」、「計測とキャラクタリゼーション※」、「性能評価」の3つのWGにおいて、国際標準化の策定に向けて議論が開始されている。（なお、※はISO/TC229とのジョイントWGとなっている。）

### 〔広報〕

- ・ナノテクノロジーに関する先端技術及び製品等の世界最大の展示会である「nano tech」が毎年日本で開催されている。2002年に開催された第1回以降、出展者来場者ともに増加傾向にあり、近年は海外、とくにヨーロッパ・アジア等の出展が目立つようになってきている。

### 〔社会受容〕

- ・ナノテクノロジーの社会受容に対する取組みは、ナノテクノロジーの産業化を推進するため、例えば工業ナノ粒子のキャラクタリゼーション技術や人の健康や環境に及ぼす影響など、潜在的な課題に関する知見を蓄積する取組みが重要である。

- ・経済産業省では、2006年度から「ナノ粒子特性評価手法の研究開発」を開始し、工業ナノ粒子の有害性評価手法、また、そのリスク評価手法の確立を目標としたプロジェクトを開始しているところ。

#### 〔人材育成〕

- ・経済産業省では、「製造中核人材育成事業」を実施しており、産学連携による波及効果の高い人材育成プログラムを開発、実践している。ナノテクノロジー関連の人材育成プログラムも複数実施しているところ。

#### （例）ナノテク製造中核人材の養成プログラム

概要：情報家電、燃料電池、ロボット、医療機器、バイオ等の応用分野において、その産業の基盤と創出を支える中堅企業を対象として、「基礎加工技能・技術、特殊な要素技能・技術に習熟し、製造技術の高度化を図る人材」及び「豊富なナノ加工プロセスの知識や先端機器を使いこなすノウハウ等を習熟し、製造現場の技能・技術を統括できず人材」を育成するもの。

- ・NEDOでは、我が国の産業技術の発展のため、先端分野や融合分野の技術を支える人材の育成と、人的交流の面から産学連携を促進するための「場」の形成を促進する取り組みを実施している（NEDO特別講座）。具体的には、優れた成果を生み出しつつあり、大学が技術の中核となっている研究開発プロジェクトをコアプロジェクトとし、そのプロジェクトリーダーの所属大学に拠点を設置し、関連技術の人材育成、人的交流の拡大、周辺研究の実施を行うもの。ナノテクノロジー関連の研究開発プロジェクトも複数実施しているところ。

#### 〔他省庁との連携〕

- ・総合科学技術会議／連携施策群において、「ナノバイオテクノロジー」「ナノテク研究推進と社会受容」が設置され、関係省庁と連携して実施しているところ。
- ・経済産業省が実施する研究開発プロジェクトにおいては、文部科学省など他省庁との連携の可能性について検討を行い、研究開発プロジェクトの立案、推進しているところ。

（例）ナノエレクトロニクス半導体新材料・新構造技術開発ーうち新材料・新構造ナノ電子デバイスプロジェクト、希少金属代替材料開発プロジェクト など

## 6. 研究開発の実施に当たっての留意事項

事業の全部又は一部について独立行政法人の運営費交付金により実施されるもの（事業に（運営費交付金）と記載したもの）は、中期目標、中期計画等に基づき、運営費交付金の総額の範囲内で、当該独立行政法人の裁量によって実施されるものである。

## 7. 改訂履歴

- (1) 平成12年12月28日付け制定。
- (2) 平成14年2月28日付け制定。材料ナノテクノロジープログラム基本計画（平成12・12・27工総第16号）は、廃止。
- (3) 平成15年3月10日付け制定。ナノテクノロジープログラム基本計画（平成14・02・25産局第8号）は、廃止。
- (4) 平成16年2月3日付け制定。ナノテクノロジープログラム基本計画（平成15・03・07産局第1号）は、廃止。
- (5) 平成17年3月31日付け制定。ナノテクノロジープログラム基本計画（平成16・02・03産局第7号）は、廃止。
- (6) 平成18年3月31日付け制定。ナノテクノロジープログラム基本計画（平成17・03・25産局第4号）は、廃止。
- (7) 平成19年4月2日付け制定。ナノテクノロジープログラム基本計画（平成18・03・31産局第13号）は、廃止。
- (8) 平成14年2月28日付け制定。
- (9) 平成15年3月10日付け制定。革新的部材産業創出プログラム基本計画（平成14・02・25産局第9号）は、廃止。
- (10) 平成16年3月7日付け制定。革新的部材産業創出プログラム基本計画（平成15・03・07産局第5号）は、廃止。
- (11) 平成17年3月31日付け制定。革新的部材産業創出プログラム基本計画（平成16・03・07産局第5号）は、廃止。
- (12) 平成18年3月31日付け制定。革新的部材産業創出プログラム基本計画（平成17・03・25産局第3号）は、廃止。
- (13) 平成19年4月2日付け制定。革新的部材産業創出プログラム基本計画（平成18・03・31産局第14号）は、廃止。
- (14) 平成20年4月1日付け、ナノテク・部材イノベーションプログラム基本計画制定。ナノテクノロジープログラム基本計画（平成19・03・20産局第1号）および革新的部材プログラム基本計画（平成19・03・19産局第4号）は、本イノベーションプログラム基本計画に統合することとし、廃止。



(ナノテク・部材イノベーションプログラム)  
「超ハイブリッド材料技術開発 (ナノレベル構造制御による相反機能材料技術開発)」  
基本計画

ナノテクノロジー・材料技術開発部

## 1. 研究開発の目的・目標・内容

### (1) 研究開発の目的

我が国の材料産業は、国際的に高い技術力と競争力を有し、経済社会の発展を支えている。次世代の材料分野では、高付加価値化に資する高度な技術開発が、今後のイノベーション促進に必要不可欠な課題となっている。すなわち、材料技術の高度化・高付加価値化が、国際競争力を強化し、新たな市場や雇用を創出する源泉として期待されている。本プロジェクトは、これらに資する基盤技術の確立を目指し、『部材分野の技術戦略マップを活用し、将来の部材の基盤技術の方向性を見定め、材料関係者だけでなく多様な連携（川上・川下産業の垂直連携、材料創製・加工の水平連携）による基盤技術開発の支援で、部材分野の技術革新を促進すること』を目的とした「ナノテク・部材イノベーションプログラム」の一環として実施するものである。

材料産業の急速な発展を背景に、部材分野における半導体関連部材（パワーデバイス材料）、光学部材（空間光制御部材）、ディスプレイ部材（低屈折率材料）などに位置付けられる有機・無機ハイブリッド材料は、大幅な性能向上が期待されている。また産業界の強いニーズである新規製品・サービスを創造するためには、従来の試行錯誤的な材料開発手法ではリソースの投資効率鈍化やエネルギーや環境への負荷増大が避けられなかった。このため、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下、「NEDO技術開発機構」という。）は、産学の知見を結集して、新しいパラダイムに基づく有機・無機ハイブリッド材料の開発を推進し、これを産業技術へ繋げていくと共に、社会の共通基盤として情報の整備、提供を通じて行政、産業界、地域住民等の中で科学的知見に基づいた正確かつ適切な認識の醸成を図るため、以下のプロジェクトを実施する。

本プロジェクトでは有機・無機ハイブリッド材料に着目し、「単なるハイブリッド化ではなく、従来材料では成し得なかったトレードオフ（相反機能）をナノレベルでの界面・分散・構造制御で解消し、相反機能を合目的的に制御・実現することができる技術あるいはそれに資する技術」を超ハイブリッド材料技術（ナノレベル構造制御による相反機能材料技術）と定義し、①超ハイブリッド材料創製技術開発当該技術、②相反機能発現基盤技術開発、③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発、④材料設計に資する統合評価・支援技術開発を実施し、我が国の材料産業の発展に大きく貢献することを目的とする。

本技術の確立により、相反機能の両立を可能にした超ハイブリッド材料の実現など、将来、幅広い産業分野で利用される共通基盤技術の形成が見込まれる。

### (2) 研究開発の目標

以下、最終目標（平成23年度末）の概要を記載。中間目標（平成21年度末）及び最終目標の詳細な数値目標については別紙の研究開発計画を参照のこと。

#### ① 超ハイブリッド材料創製技術開発

研究開発項目②相反機能発現基盤技術開発、研究開発項目③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発、研究開発項目④材料設計に資する統合評価・支援技術開発の成果をもとに、具体的ないくつかの部材に

ついて従来材料では実現できなかったトレードオフを解消するとともに、市場評価が可能な成果物を供試し、市場（ユーザー）から、客観的な実用化研究開発課題を抽出する。また、単なる相反機能の解消ではなく、相反機能を制御・実現する技術を開発する。

## ② 相反機能発現基盤技術開発

従来材料では実現できなかったトレードオフを解消するため、相反機能発現に必要な界面制御、分散・配向制御等の基盤技術を開発・確立する。

## ③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

官能基導入ナノ粒子等の高効率合成プロセス及び均一分散・配向・配列プロセスの基盤技術を開発し、これらプロセスが連動した相反機能材料創製プロセス基盤技術を開発・確立する。

## ④ 材料設計に資する統合評価・支援技術開発

相反機能を発現する、材料・部材の基本構造の特性解析及び設計に関する統合評価・支援技術を確立する。

### （3）研究開発内容

上記目標を達成するために、別紙の研究開発計画に基づき以下の研究開発を実施する。なお、共通基盤技術及び要素技術開発は委託により実施し、実用化に向けた取り組みは助成（助成率1／2以内）により実施する

[委託事業]、[助成事業（助成率：1／2以内）]

- ① 超ハイブリッド材料創製技術開発
- ② 相反機能発現基盤技術開発
- ③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発
- ④ 材料設計に資する統合評価・支援技術開発

## 2. 研究開発の実施方式

### （1）研究開発の実施体制

本研究開発は、経済産業省により、企業、民間研究機関、独立行政法人、大学等（委託先から再委託された研究開発実施者を含む）から公募によって研究開発実施者が決定され、共同研究契約等を締結する研究体が構築され、平成19年度より委託により実施されている。平成20年度より、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下、「NEDO技術開発機構」という）が本研究開発を運営・管理するに当たっては、外部有識者から構成される技術評価委員会等を設置し、平成19年度の進捗状況を踏まえた事業内容・計画及び実施体制の妥当性についての審議に基づいた評価を行った上で委託して実施する。

共同研究開発に参加する各研究開発グループの有する研究開発ポテンシャルの最大限の活用により効率的な研究開発の推進を図る観点から、研究体にNEDO技術開発機構が指名する研究開発責任者（プロジェクトリーダー）東北大学多元物質科学研究所教授 阿尻雅文氏を置き、その下に研究者を結集して効率的な研究開発を実施する。

本研究開発において、基礎的・基盤的研究開発であると判断される研究開発内容に示した共通基盤技

術及び要素技術は委託により実施する。また、委託により開発した技術を利用し実用化に向けて産業界から具体的な取り組みが示された場合は、適宜助成（助成率1／2）による支援を検討する。

## （2）研究開発の運営管理

研究開発の全体の管理・執行に責任を有するNEDO技術開発機構は、経済産業省及びプロジェクトリーダーと密接な関係を維持しつつ、プログラムの目的及び目標、並びに本研究開発の目的及び目標に照らして適切な運営管理を実施する。具体的には、外部有識者の意見を運営管理に反映させるほか、プロジェクトリーダー等を通じてプロジェクトの進捗について報告を受けること等を行う。

## 3. 研究開発の実施期間

本研究開発の期間は、平成20年度から平成23年度までの4年間とする。

本研究開発は平成19年度に経済産業省が実施した「超ハイブリッド材料技術開発」事業について、平成20年度よりNEDO技術開発機構の事業として実施する。

## 4. 評価に関する事項

NEDO技術開発機構は、技術的及び政策的観点から研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義並びに将来の産業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、事後評価を実施する。中間評価を平成21年度、事後評価を平成24年度に実施する。また、中間評価結果を踏まえ必要に応じプロジェクトの加速・縮小・中止等見直しを迅速に行う。なお、評価の時期については、当該研究開発に係る技術動向、政策動向や当該研究開発の進捗状況に応じて、前倒しする等、適宜見直すものとする。

## 5. その他の重要事項

### （1）研究開発成果の取扱い

#### ①成果の普及

実施者は、得られた研究成果の普及について、可能な限り、保有する特許等の活用も含め、最善の努力をするものとする。NEDO技術開発機構及び経済産業省は、実施者との緊密なる連携の下、必要とされる環境整備等について十分な配慮をするものとする。

#### ②知的基盤整備事業又は標準化等との連携

得られた研究開発の成果については、知的基盤整備又は標準化等との連携を図るため、必要に応じてデータベースへのデータの提供、標準情報（TR）制度への提案等を積極的に行う。

#### ③知的財産権の帰属

委託研究開発の成果に関わる知的財産権については、「独立行政法人新エネルギー産業技術総合開発機構 新エネルギー・産業技術業務方法書」第27条の規定等に基づき、原則として、すべて委託先に帰属させることとする。

### （2）基本計画の変更

NEDO技術開発機構及び経済産業省は、研究開発内容の妥当性を確保するため、社会・経済的状況、

国内外の研究開発動向、産業技術政策動向、プログラム基本計画の変更、第三者の視点からの評価結果、研究開発費の確保状況、当該研究開発の進捗状況等を総合的に勘案し、達成目標、実施期間、研究開発体制等基本計画の見直しを弾力的に行うものとする。

### (3) 根拠法

本プロジェクトは、独立行政法人新エネルギー・産業技術開発機構法第15条第1項第2号及び3号に基づき実施する。

### (4) その他

本研究によって得られたあらゆる知的財産、また本研究の過程または成果に基づき開発したプログラム、サンプルもしくは装置などの成果物について、本プロジェクト外（国内外）への供試・開示については、事前にプロジェクトリーダーとNEDO技術開発機構に連絡する。その際に、NEDO技術開発機構が申請書の提出を求めた場合は、これに応じ速やかに提出する。

## 6. 基本計画の改訂履歴

(1) 平成20年3月、制定。

(2) 平成20年7月、イノベーションプログラム基本計画の制定により、「(1) 研究開発の目的」の記載を改訂。

## (別紙) 研究開発計画

### 研究開発項目① 「超ハイブリッド材料創製技術開発」

#### 1. 研究開発の必要性

急速に進展する情報家電、自動車産業等の高度な要求を満たす透明導電膜、パワーデバイス、耐熱材料、高度情報通信に不可欠な光学材料等で、トレードオフすなわち、相反機能（既存材料では同時に発現させるのが困難で、材料特性上その機能が相反する複合機能を言う。例えば、絶縁性と熱伝導性など）を有する材料等が求められている。

高分子、金属、セラミックス等の個別の材料では、新素材の開発が期待される一方で、様々な観点から、この要求を満足させることは困難となりつつある。例えば、新たに複合材料を創製する場合でも、既存手法である剪断力による混練等の手法のみでは限界があり、目標とする性能を達成すること、すなわちトレードオフを解消することは困難と思われる。

そこで、新素材の開発を標榜するのではなく、ナノテクノロジーを活用し、ナノメートルサイズでも精密な分子設計（構造制御）を可能とし、既存材料の複合化を分子レベルで制御することにより、トレードオフを解消したいとの機運が高まっている。

#### 2. 研究開発の具体的内容

##### (1) 達成手法の選択・提案・実施

研究開発項目④の「材料設計に資する統合評価・支援技術開発」を活用し、効率的に材料設計と評価を実施するとともに、研究開発項目②の「相反機能発現基盤技術開発」、研究開発項目③の「相反機能創製プロセス基盤技術開発」の成果を活用し、相反機能材料を創製、すなわち超ハイブリッド材料創製に資する要素技術を開発する。

開発部材の使用環境も考慮した機能評価手法を提案するため、上記の研究開発項目②、③、④から、最適な達成手段を選択し、あるいは新規に提案し、機能評価結果を材料設計に反映させるとともに、目標値を達成する。

##### (2) 市場評価可能とする成果物の供試

(1) の目標達成を客観的に判断できるように、市場に評価を受けて実用化するための課題を客観的に抽出するために、市場評価が可能な条件（形態・数量）を明らかにし、成果物を供試する。

#### 3. 達成目標

##### 【中間目標（平成21年度末）】

##### (1) 機能合目的的達成手法の提案

以降の（Ⅰ）～（Ⅲ）に示す分野の部材について、下記の間目標値を達成する一手法以上を提案すること。ただし単に目標値を達成するのではなく、相反機能を合目的的に実現する手法であること。

##### (Ⅰ) 電気・電子材料分野

###### [1] パワーデバイス周辺材料（モーター、自動車電装品）：

熱伝導率 $\geq 30\text{W/m K}$ 、耐熱性 $\geq 300^\circ\text{C}$ 、絶縁破壊電圧 $\geq 30\text{kV/mm}$ 、易成形性であること。

###### [2] ICパッケージ周辺材料（熱伝導材料、封止材）：

- 〈非絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 40\text{W/m K}$ 、接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{MPa}$ （at  $260^\circ\text{C}$ ）  
〈絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 7\text{W/m K}$ 、体積抵抗率 $\geq 10^{11}\Omega\cdot\text{cm}$ （at  $150^\circ\text{C}$ ）、  
接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{MPa}$ （at  $260^\circ\text{C}$ ）

[3] 高放熱性材料料：

熱抵抗値 $\leq 0.03^\circ\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ （厚み 10-100 $\mu\text{m}$ ）、硬化前粘度 $\leq 200\text{Pa}\cdot\text{s}$

[4] 高耐熱材料：

貯蔵弾性率の低下率（室温と $300^\circ\text{C}$ での値の比較） $\leq 10\%$ 、  
熱膨張係数 $\leq 2.0\times 10^{-5}\text{K}^{-1}$ 、硬化前粘度 $\leq 200\text{Pa}\cdot\text{s}$

(II) 光学材料分野

[1] 低屈折率材料（機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、光導波路）：

屈折率 $\leq 1.42$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3\text{H}$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$   
易成形性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10\text{g}/10\text{min}$

[2] 高屈折率材料（機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、レンズ）：

屈折率 $\geq 1.6$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3\text{H}$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$ 、  
易成形性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10\text{g}/10\text{min}$

(III) その他工業材料分野

[1] 放熱性材料（液晶画面用 LED 放熱用、燃料電池車・ロボット駆動部放熱用）：

熱伝導率 $\geq 20\text{W/m K}$ 、成型粘度 $\leq 1000\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、耐衝撃性 $\geq 15\text{J/m}$ 、比重 $\leq 3.5$ 、  
体積抵抗率 $\geq 10^{12}\Omega\cdot\text{cm}$

(2) 市場評価可能とする成果物の供試

(1) の目標達成を客観的に判断できるように、市場評価が可能な条件（形態・数量）を明らかにし、成果物を供試する。市場の評価を受けて、実用化するための課題を客観的に抽出する。

【最終目標（平成 23 年度末）】

(1) 機能合目的的達成手法の提案

以降の (I) ~ (III) に示す分野の部材について、下記の最終目標値を達成する一手法以上を提案すること。ただし単に目標値を達成するのではなく、相反機能を合目的的に実現する手法であること。

(I) 電気・電子材料分野

[1] パワーデバイス周辺材料（モーター、自動車電装品）：

熱伝導率 $\geq 40\text{W/m K}$ 、耐熱性 $\geq 400^\circ\text{C}$ 、絶縁破壊電圧 $\geq 50\text{kV}/\text{mm}$ 、易成形性であること。

[2] IC パッケージ周辺材料（熱伝導材料、封止材）：

〈非絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 60\text{W/m K}$ 、接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{MPa}$ （at  $260^\circ\text{C}$ ）

〈絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 15\text{W/m K}$ 、体積抵抗率 $\geq 10^{11}\Omega\cdot\text{cm}$  (at 150°C)、  
接着強度 (熱サイクル 1000 回後)  $\geq 1\text{MPa}$  (at 260°C)

[3] 高放熱性材料料 :

熱抵抗値 $\leq 0.01^\circ\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$  (厚み 10-100 $\mu\text{m}$ )、硬化前粘度 $\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}$

[4] 高耐熱材料 :

貯蔵弾性率の低下率 (室温と 300°C での値の比較)  $\leq 10\%$ 、  
熱膨張係数 $\leq 1.5 \times 10^{-5}\text{ K}^{-1}$ 、硬化前粘度 $\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}$

(II) 光学材料分野

[1] 低屈折率材料 (機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、光導波路) :

屈折率 $\leq 1.4$ 、鉛筆硬度 (JIS K5600)  $\geq 4\text{H}$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$   
易成形性 MFR (メルトフローレイト JIS K7210)  $\geq 30\text{g}/10\text{min}$

[2] 高屈折率材料 (機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、レンズ) :

屈折率 $\geq 1.7$ 、鉛筆硬度 (JIS K5600)  $\geq 3\text{H}$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$ 、  
易成形性 MFR (メルトフローレイト JIS K7210)  $\geq 10\text{g}/10\text{min}$

(III) その他工業材料分野

[1] 放熱性材料 (液晶画面用 LED 放熱用、燃料電池車・ロボット駆動部放熱用) :

熱伝導率 $\geq 40\text{W/m K}$ 、成型粘度 $\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、耐衝撃性 $\geq 24\text{J/m}$ 、比重 $\leq 2.5$ 、  
体積抵抗率 $\geq 10^{12}\Omega\cdot\text{cm}$

(2) 市場評価可能とする成果物の供試

(1) の目標達成を客観的に判断できるように、市場評価が可能な条件 (形態・数量) を明らかにし、成果物を供試する。市場の評価を受けて、実用化するための課題を客観的に抽出する。

## 研究開発項目② 「相反機能発現基盤技術開発」

### 1. 研究開発の必要性

ナノメートルサイズにおける精密な分子設計(構造制御)の進歩により、既存材料の複合化を分子レベルで制御すれば、材料特性が向上する可能性が示されてきた。各材料の特性を重ね合わせただけの従来型複合材料を超えた新たな機能創出を図るためには、分子レベルで表面修飾や界面制御等を行うことが必要であり、ナノレベルでの精密な材料設計、材料構造制御の手法の開発が強く求められている。

### 2. 研究開発の具体的内容

#### (1) 有機・無機材料界面の制御技術

電気・熱伝導等を発現させつつ無機ナノ粒子等表面に有機官能基を結合させる機構の解明とそれに関する基盤技術、並びに有機材料と無機材料の界面での相互作用等を制御する機構の解明とそれに基づく界面制御技術を開発する。

#### (2) ナノ空間制御技術

層間化合物・空孔化合物・デンドリマー等をナノ空間形成単位とし、これらを有機マトリックスとハイブリッド化し、サイズ・形状・配列等が制御されたナノ中空構造材料とするなどにより、相反機能を実現するナノ空間制御技術を開発する。

#### (3) ナノ構造制御技術

外場付与・自己組織化等により、無機ナノ粒子等の有機マトリックス中での分散・配向・配列等を制御することにより相反機能を発現させる無機材料を主とした基盤技術を開発する。

#### (4) ナノ空間・構造制御手法最適化技術

ナノ空間・構造が合成過程でどのように形成されているかを *i n - s i t u* に解析し、(1)、(2)、(3)の機構解明の成果の援用も得つつ、また研究開発項目④の総合評価・支援技術と共同し、相反機能を発現する制御手法最適化技術を確立する。

### 3. 達成目標

#### 【中間目標 (平成21年度末)】

研究開発項目① 「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能の発現手法を提供し、中間目標値達成に寄与する。

#### 【最終目標 (平成23年度末)】

研究開発項目① 「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標を達成する相反機能の発現機構を明らかにし、それに基づき相反機能発現材料のナノ空間・構造制御手法を確立する。



### 研究開発項目③ 「相反機能材料創製プロセス基盤技術開発」

#### 1. 研究開発の必要性

開発された材料を、用途に応じた部材として利用するためには、その構造、機能、形状等を制御するとともに、生産量・コスト面でユーザー等からの要望に応えることが求められている。このため、実用化段階で予測される超ハイブリッド材料への多様な用途、機能等のニーズに対応して、各種の相反機能材料を創製できるプロセス技術の確立が必要である。

#### 2. 研究開発の内容

超ハイブリッド材料の分子レベルの構造制御により相反機能を発現する材料創製プロセスを開発する。プロセスの高度・精密制御を可能にするため、プロセスと一体になった *i n - s i t u* 測定技術、プロセス設計技術を併せて開発する。

##### (1) 官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術

###### i) 粒子等表面に有機官能基を大量、高速に導入する技術

高分子中への高濃度、完全分散を目的とし、マイクロ・ナノメートルサイズの粒子等の表面に、有機官能基を、大量、高速、経済性良く導入するための技術を確立する。

###### ii) 有機官能基を導入したナノ粒子等の *i n - s i t u* 合成技術

上記 i) の知見に基づき、目的とするナノ粒子等を合成しつつ、*i n - s i t u* で単一粒子表面に目的の有機官能基を導入する基盤技術を確立する。

###### iii) 有機修飾ナノ粒子等の大量、高速、精密合成技術

上記 i)、ii) の有機無機修飾に関する知見に加え、反応場の相の状態や反応の進行の *i n - s i t u* 測定を行い、また (3) のプロセス最適化技術の知見に基づいて、粒子径分布を精密に制御しつつ、大量、高速に合成するプロセスを開発する。

##### (2) 高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス技術

表面修飾ナノ粒子等を高分子中に均一分散させ、配向・配列を制御するプロセス技術を開発する。精密外場制御、基板相互作用制御等による高分子の相分離・配向構造の動的変化過程、さらにはその結果生じるナノ粒子等と高分子間の相互作用の制御を行うことで、高分子中のナノ粒子等の分散・配向・配列性制御基盤を構築するとともに高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセスを開発する。

##### (3) プロセス最適化技術

表面修飾ナノ粒子等の合成プロセス、高分子中のナノ粒子等の配向・配列プロセスを *i n - s i t u* に解析し、研究開発項目④の統合評価・支援技術と共同し、表面修飾ナノ粒子等の合成プロセス、均一分散・配向・配列プロセスの最適化技術を確立する。

#### 3. 達成目標

##### 【中間目標（平成21年度末）】

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能を発現する材料を合成するプロセス技術を提供し、成果物を供試し、中間目標達成に寄与する。

**【最終目標（平成23年度末）】**

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標を達成する相反機能を発現する材料を合成するプロセス技術を確立する。

## 研究開発項目④ 「材料設計に資する統合評価・支援技術開発」

### 1. 研究開発の必要性

相反機能発現から相反機能創製プロセスにわたっては、表面、界面をナノレベルで制御する必要があるが、表面、界面の構造・状態をナノレベルで解析するのは計測手段の原理の物理的限界を超える場合が多いため一般的には困難と考えられてきた。したがって、現状市販レベルの計測解析手法だけでは相反機能材料の設計に必要な情報が不足するのは明らかである。

近年、従来は不可能だった特異な現象のナノレベル計測や、ナノレベルあるいはそれ以下のサイズの状態を推定できる解析手法が開発され、これら技術を相反機能材料の解析評価に適応させることで、分子レベルでの構造制御等の技術開発を効果的に推進することが可能になった。これらを積極的に応用し、相反機能材料の構造・状態に関する情報量を飛躍的に増加させることは材料開発にとって必要不可欠である。

また、相反機能材料設計を効率的に進めるには、前述の高度計測結果とともに、研究開発項目①における機能評価や研究開発項目②、③における現場モニタリング等の各階層における結果を情報科学的に収集、分類、統合し、機能発現に関わる経験則などを新しい知識体系として取り出し、材料設計にフィードバックするという一連の取組を材料に応じて柔軟に実施できることが必要不可欠である。

### 2. 研究開発内容

一企業又は団体では開発や保有維持が困難な先端分析手法を活用し、市販の装置に頼るのみでは計測が困難である相反機能材料の局所構造及び状態を高度計測する。ナノレベル空間分解能を達成するためには、実際の計測手段だけでなく、計算機による画像復元技術も活用する。相反機能材料では原子・分子の配列や欠陥から界面・表面の状態までの多階層のスケールでの現象が機能発現に密接に関係するため、測定対象とのインタフェース部分を高度化・最適化するとともに現象のスケールに適合した手法を駆使し、多面的な情報を収集する。多変量解析等の情報解析技術を着目する材料機能に絞って活用し、上記の計測解析結果、さらに研究開発項目①における機能評価や研究開発項目②、③における現場モニタリング等の各階層における情報を収集、分類、統合し、相反機能発現の鍵となる因子を探索する。成果を研究開発項目①～③の技術開発チームにフィードバックし、相反機能材料の設計に反映させる。

### 3. 達成目標

#### 【最終目標（平成23年度末）】

相反機能材料の表面・界面、バルク・深さ方向の構造及び状態をナノレベルまでの分解能で複合的・多面的に解明できる計測手法を構築する。得られた計測結果に開発部材の機能評価、相反機能発現・相反機能材料創製過程における評価から得られる分解能、雰囲気などが異なる階層的なデータを統合、情報科学的に処理し、機能発現に関わる経験則などの新しい知識体系として取り出すための手法を開発する。得られた結果を超ハイブリッド材料の設計に反映させる。

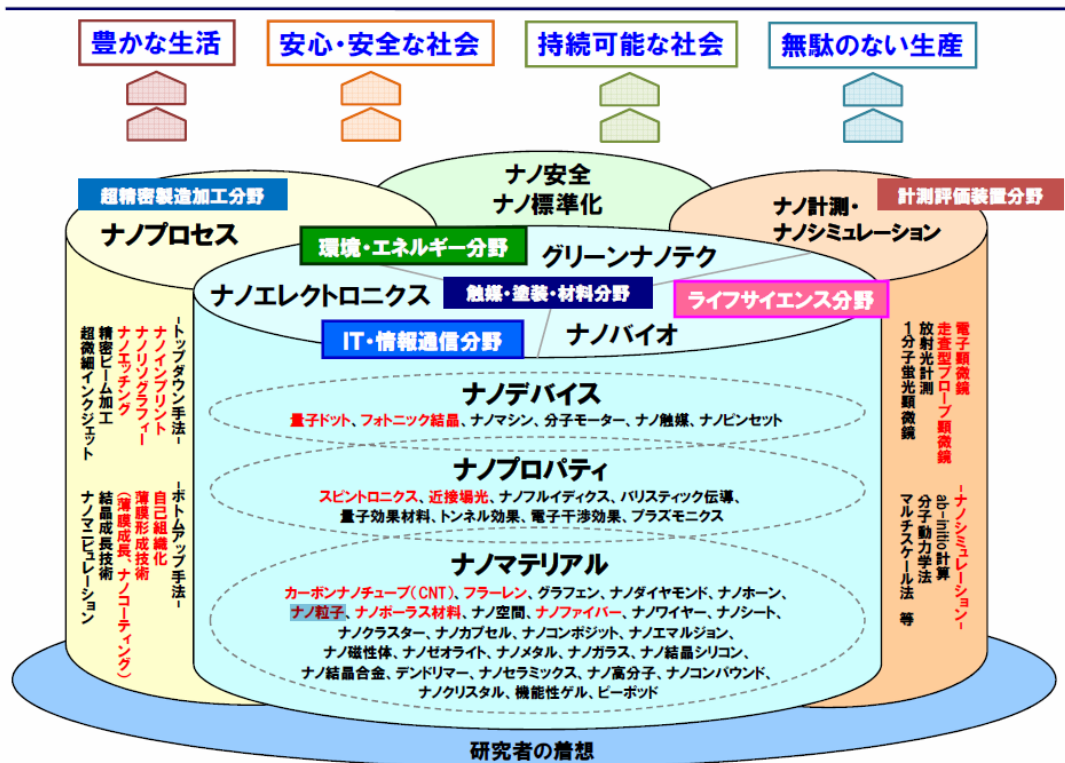
## 技術戦略マップ

本プロジェクトは、経済産業書の技術戦略マップ 2009 の部材分野の材情報家電分野 - 半導体関連部材（パワーデバイス材料）、光学部材（空間光制御部材）、ディスプレイ部材（透明多機能膜）及びナノテク分野のナノマテリアル・ナノ粒子 に位置付けられて実施するものである。

### 2. 情報家電分野

技術番号	対象部材 (大項目)	対象部材 (小項目)	出口から部材に対し求められる機能	求められる機能を発現する高度部材		
2-01-01	半導体関連部材	パワーデバイス材料	大電流、高電流密度、処理性能、低コスト、導電性・高硬度	窒化物半導体/SiC/ダイヤモンド/CNTパワーデバイス、有機・無機ハイブリッド材料		
2-01-02		層間絶縁材料	低誘電率、低誘電損失、高速化、微細化、低消費電力化	ブロック共重合体、フッ素系、有機無機複合		
2-01-03		LSIプロセス用材料	微細加工対応(光反応性、平坦化性、高精密度)、高易加工性	脂環式高分子レジスト、無機有機複合CMP材料、高易加工性材料(NiW)、高精密度金属型材料(WC)		
2-01-04		超ホール輸送材料、横方向輸送材料	電荷輸送性	高分子、複合材料、ナノ誘電体		
2-01-05		ローパワーデバイス材料	小電流化、低電流密度	アンチモン化インジウム、high-k材料		
2-04-01	光学部材	光メモリー用光学部材	光ピックアップ用光学部材	紫外透過、低損失	ワイドバンドギャップ無機材料(微量成分添加/ハイブリッド化、耐熱性の向上)、高純度ポリマー材料(高純度化、耐熱性の付与)	
2-04-02			光配線媒体(ホログラフイ、光テープ)	高精度化、高アスペクト比化	一次元サブ波長構造体(矩形周期構造形成、製造コスト低減)	
2-04-03			超高密度光メモリー用配線再生部材	高速度性、低電力、高S/N 高密度化	高屈折率変化フォトポリマー材料(高感度化、多重度の増加) 無機材料(相構造変化)、スーパーアトム(構造制御)、多層化(集点深度内薄層多層化)	
2-04-04		撮像用光学部材	結像マイクロレンズ	短焦点・無収差	高屈折率・低分散ガラス(希土類、重元素、ハロゲン添加、無鉛化)、屈折率制御ガラス材料(屈折率制御)、高屈折・低分散ポリマー材料(ナノ粒子分散、屈折率温度無依存性(アサーマル))	
2-04-05			無反射コート部材	無反射	2次元サブ波長構造体(円錐・四角錐周期構造形成)	
2-04-06		空間光制御部材	表示機構	偏光制御	1次元サブ波長構造体(矩形周期構造形成)、LCD用各種フィルム(製造コストの低減)	
2-04-07				反射制御	3次元サブ波長構造体(円錐・四角錐周期構造形成)	
2-04-07				干渉制御	有機電子発光材料(製造速度向上)	
2-04-08			フィルター	位相制御	1次元サブ波長構造体(製造速度向上)	
2-04-08				波長制御	IRカットフィルター(色素分散形成)	
2-04-09			FPD用光学部材	透明電極膜	透明、低電気抵抗、低価格	ワイドバンドギャップ透明電極(AZO,GZO,TiO2など)(インジウム代替の酸化物および導電性高分子)
2-04-10				液晶プロジェクションディスプレイ用光学部材	無反射 偏光制御	多層膜(大面積・高強度・広波長帯域化技術) 1次元サブ波長構造体(屈折型(矩形周期構造形成)、反射型(ワイヤーグリッド形成))、微粒子分散材料(吸収型(金属ナノ構造寸法・位置高精度制御などによる可視域透過型構造形成))、近接場相互作用ナノ構造部材(発光型(金属ナノ構造寸法・位置高精度制御))
2-04-11	FPD用関連部材		隔壁部材	高精度発光セル部材	リブ基板(高速成形)	
2-04-12		防湿部材	低透湿	低透湿多層膜(低透湿材料合成)		
2-05-01	ディスプレイ部材	駆動用半導体	AmSi並の移動度、高オンオフ比	CNT分散有機半導体		
2-05-02		回路部材	導電性、透明性、柔軟性、耐熱性、低価格化	印刷による回路形成用導電性高分子(ベース)、分子導線、CNTビア配線材料		
2-05-03		ガラス代替パネル	軽量化、低価格化、可とう性、透明・軽量	プラスチックパネル・膜(透明高分子)		
2-05-04		基板	可撓性、低膨張係数	有機材料、有機無機複合材料		
2-05-05		透明多機能膜	超低透水性、ガスバリア性、光位相制御、柔軟性、防汚性、表面反射抑制、光利用効率、耐熱性、耐水性、紫外透過	有機膜材料、機能ガラス、ナノ加工・アドリソグラフィによる微小光学部材(ナノファイバー)、有機・無機ハイブリッド材料、偏光子		
2-05-06		ブラックマトリクス	遮光性、光反応性	高分子、有機材料		
2-05-07		発光材料(光源)	高輝度、高効率、長寿命、低エネルギー	有機発光材料(有機)、無機LED、有機EL(高分子、低分子、 dendrimer)、高効率低電圧励起発光材料(無機)		
2-05-08		絶縁膜材料	表面化学特性制御、機械特性、均一膜形成	ケイ素系基板適合低誘電率材料		
2-05-09		FED電子源	高導電性、易電子放出特性、低価格、均一性	スーパーグロスCNT		

「部材分野における技術戦略マップの位置付け」 技術戦略マップ 2009



「ナノテクノロジー分野における技術戦略マップの位置付け」 技術戦略マップ 2009

プロジェクト用語集

○Ⅲ. 2 研究開発項目毎の成果 ((財) 化学技術戦略推進機構・(独) 産業技術総合研究所) 該当分

用語(日本語)	English	用語の説明
アッベ数	Abbe' s number	透明体の色収差を評価する数値。
イメージセンサ	Image sensor	固体撮像素子。
鉛筆硬度	Hardness of pencil	引っかき硬度 (鉛筆法) 試験 JIS K5600-5-4 硬度試験は塗膜の硬化乾燥状況を確認する重要な試験法
核磁気共鳴 (NMR) 法	Nuclear Magnetic Resonance	微少な磁石である原子核の特性を利用して、原子の性質を観測する手法である。観測したい試料を強磁場中に置いて、FM ラジオに使われる帯域の高周波を試料に照射し、試料から生じるシグナルを検出する。水素核および炭素核のNMR法は有機化合物の同定に必須の手法となっている。
基盤目剥離	Tape-peeling test	出力面に 1mm の基盤目 (マス目) をカッターで作りその上にセロハンテープを貼り、引き剥がす試験。
金属クラスター錯体	Metal cluster complex	複数の金属原子からなる骨格に CO 分子などの配位子が結合してできた分子の総称で、 $\text{Ir}_4(\text{CO})_{12}$ のように、安定な無機分子でありながら 1,000 以上の分子量をもつ分子が容易に得られる。 $\text{Ir}_4(\text{CO})_{12}$ のように比較的低温で蒸気圧をもつ分子や溶液中で分子量数千のイオンとして安定な分子など、多種多様な分子種が知られている。分子量の大きなクラスターを SIMS の一次イオンに用いると、運動エネルギーが多数の構成原子の分配されるため、通常の原子・分子イオンに比較して、測定試料に対して低浸襲なエッチングが可能となる。
顕微ラマン分光	Raman microscopy	分光器に光学顕微鏡を組み込むことで、レーザ照射されたマイクロオーダーの微小領域から生じるラマン散乱光のスペクトルを測定する。コンピュータ制御による試料台の移動あるいはレーザ光のスキャンにより広範囲の測定 (マッピング) を行うこともできる。
コアシェル	Core shell	結晶粒子構造等で内部組成と表面組成成分を変え機能を向上させたもの
構造指向剤	Structure-directing agent	構造指向剤はテンプレートとも呼ばれ、ゼオライトのような結晶性酸化物の合成において、該酸化物の構造を誘導ないしは指向させる効力を持つ添加剤で

		ある
固体NMR法	Solid-State Nuclear Magnetic Resonance	固体状態の試料をそのままの状態でのNMR観測する手法である。有機化合物の同定に用いる場合は、通常、重水素化溶媒に試料を溶かしてから測定するが、固体NMR法では固体状態のまま非破壊で観測する。高強度の高周波パルス発生器、高耐圧の検出器などが必要となる。
3次元電子線トモグラフィ法	Three-dimensional electron tomography	電子顕微鏡により試料の3次元情報を得る手法、透過型電子顕微鏡と高傾斜を組み合わせた試料傾斜-再構築法、ならびに集束イオンビーム法と走査型電子顕微鏡を組み合わせたスライス再構築法がある。
視感度反射率	Luminous reflectance	物体面から反射する光束と物体面に入射する光束との比。
自己組織化	self-organization	みずから一定の秩序（オーダー）を形成し、変容を継続しながら創発的に秩序を形成するプロセスを総称した概念
スクリプト	Script	C言語やFortranなどコンピュータ内部での処理言語（機械語）への翻訳を要する基本的な言語では冗長、複雑な記述が必要となるプログラムや処理を、簡易に記述・実行するためのプログラミング言語。
スピコート	spin-coating	平滑な基材を高速回転させる事により遠心力で薄膜を構成する塗布装置である
絶縁金属基板	Insulated metal substrate	回路パターンを形成するための銅箔と放熱板であるアルミ板を絶縁層で接着した金属基板
絶縁破壊	dielectric breakdown	絶縁体に印加する電場が、ある限界以上になると突然に絶縁性を失って大電流を通すようになる現象
多重解像度分解（ウェーブレット変換）	Multi resolution analysis	周波数解析手法の一種。元の信号を高周波成分と低周波成分に分解し、分解した成分をさらに高周波成分と低周波成分に分解する処理を繰り返すことをいう。画像データに適用することにより原画像とは異なる解像度の画像を得ることができる。
多変量解析	Multivariate analysis	互いに関係のある多種類のデータ（多変量）を取り扱う統計解析手法。本研究の場合、一つの材料の構造を異なる計測手法で評価したときの異なる種類のデータを、マクロな材料特性に影響する因子として統合し評価する場合などに用いる。また、量的データだけでなく分子レベルでの結合状態のような質的なデータを取り扱うこともできる。
地球統計学	Geostatistics	地下資源の分布予測を行うために発達した統計学の

		一分野。地下資源の他、地下水の水脈、植生分布など自然界における種々の現象の空間的相関をモデル化し、限られたデータから全体像の推測を行うことを目的とする。
ナノインデント	nano indenter	薄膜機械的特性測定装置
パーコレーション	Percolation	たとえば、不導体の中に、導体を混入していったとすると、導体の割合がある臨界量に達した時に、電流が流れ始めるという転移。
パワーデバイス	Power device	通常の半導体素子に比べて、高耐圧化、大電流化、高速・高周波化された素子。
バリオグラム	Variogram	空間内二点間におけるデータ値の差の二乗の期待値（＝分散）を二点間の距離（離間距離）の関数として表したもので、地球統計学において現象の空間的相関をモデル化する際に用いられる。自己空間相関関数ともいう。すべての離間距離で一定値を示す場合には、データ間に空間的相関はないと考えることができる。
反射防止フィルム (ARフィルム)	Anti-reflection film	反射防止層による光干渉を利用し、画面の表面反射・映り込みを抑え、反射光を低減する効果を持っているフィルム。
Handa リフロー	Solder reflow	基板にはんだペーストを印刷し、その上に部品をのせてから熱を加えて半田を溶かす方法
プリズムカップラー	prism coupler	プリズムカップリング法による精密屈折率測定装置
ビーズミル	beads mill	液体中の粒子をナノメートルサイズまで粉砕・分散する装置。粉砕室と呼ばれる容器の中に、ビーズ（粉砕メディア）を80%程度充填しておき、粉砕室中央の回転軸を周速10m/秒で回転させることにより、ビーズに運動を与え、ここに原料（粉体）を液体に混ぜたスラリーをポンプで送り込み、ビーズを衝突させることによって微粉砕・分散する。
フレネルレンズ	Fresnel lens	通常のレンズを同心円状の領域に分割し厚みを減らしたレンズであり、のこぎり状の断面をもつ。
プリズムカップラー	prism coupler	プリズムカップリング法による精密屈折率測定装置
ヘイズメーター	Haze meter	曇り度測定装置。
放熱シート	Thermal conductive sheet	パワートランジスタ、ドライバIC、MPUなど各種電子部品から発する熱を効率良く伝熱し、蓄熱を防止する放熱材料の一つ。
マジック角回	Magic Angle Spinning	磁場方向に対し54.7度傾いた軸の周りで試料を高速



転 (MAS)		回転させる方法である。54.7度をマジック角という。固体試料のNMRスペクトルにおけるシグナルの線幅は、溶液試料に比べて非常に広く、スペクトルの分解能が低い。試料をマジック角回転させることにより、シグナルの線幅が狭くなり、高分解能スペクトルが得られる。
メカノケミカル分散法	Mechanochemical Dispersion	固体物質の粉碎過程での摩擦、圧縮等の機械エネルギーにより局部的に生じる高いエネルギーを利用する分散法。
マイクロ相分離構造	Micro Phase Separation Structure	異種のポリマーAとポリマーBから成るブロック共重合体異種のポリマーAとポリマーBから成るブロック共重合体では、A-B間の共有結合のために巨視的な相分離は不可能であり、分子鎖のスケール（数nmから数十nmのオーダー）の微視的な相分離のみが可能である。これはマイクロ相分離と呼ばれ、共重合体組成や温度などの条件によって球状、ラメラ状、シリンダー状などの特徴的な周期構造を形成する。
メルトフローレイト (MFR)	melting flow rate	溶融樹脂流動性測定装置。
MOMI 超	Monolayer Organic Modified Inorganics	アイテック社製流通式超臨界水熱合成装置の商品名。
ライニング	Lining	ある素材の上に他の物質を被覆することをライニングとよんだり、コーティングと称したりしている。また、場合によっては被覆したものをこのようによぶこともある。
SIMS	Secondary ion mass spectrometry	二次イオン質量分析法。深さ方向の元素分析法の一種。酸素分子やセシウム等の一次イオンビームにより試料表面を削る際に生成する二次イオンを質量分析することにより、測定時間から見積った深さに対する元素分析を行う手法。シリコンなどの無機材料に用いられることが多く、下記のスタティック (ToF) SIMS と区別してダイナミック SIMS とも呼ばれる。
XML	XML (Extensible Markup Language)	インターネットのホームページ作成に用いられるHTML形式に類似したデータ記述形式の一つ。数値、画像といったデータの種類の違い、計測手法、計測機器、解析ソフト毎のデータ形式の違いをデータの意味や構造を含めた「タグ」で記述することにより統一化、効率的にデータベース保存、参照利用することが出来る。

○Ⅲ. 3 研究開発項目毎の成果 (三菱化学(株)・(独) 産業技術総合研究所) 該当分

用語 (日本語)	English	用語の説明
HEV	Hybrid electric vehicle	ハイブリッド自動車
EV	Electric vehicle	電気自動車
アスペクト比	Aspect ratio	2次元形状の物の長辺と短辺の比率を指し示す言葉。
固溶	Solid solution	2種類以上の元素(金属の場合も非金属の場合もある)が互いに溶け合い、全体が均一の固相となっているものをいう。非金属元素同士が互いに溶け合った場合は、混晶(こんしょう)ともいう。
シッフ塩基	Schiff base	窒素原子に炭化水素基(アリアル基やアルキル基)が結合したイミンを指す呼称。一般式 $R^1R^2C=N-R^3$ ( $R^3 = \text{alkyl, aryl, etc., not H}$ ) と表され、炭素・窒素二重結合を含む。
メソゲン基	Mesogen group	液晶性を発現するための、芳香環を有するなど、剛直かつ配向性を有する官能基(原子団)の一般的名称。
ラビング	Rubbing	液晶では、配向膜に配向性を与える為、布を用いて一方向にこすり、筋を付ける処理を指す。
フォノン伝導	Phonone conductuion	振動を量子化したもので、結晶中の格子振動の伝播のことをさす。単結晶で最も伝播しやすく、結晶中の欠陥や電子との衝突などによって伝播距離は著しく減少する。
乱層構造	Tarbo stratic structure	無秩序な積層構造。低温または気相法で合成したボロンナイトライド(BN)で見られる。
パーコレーション理論	Percolation theory	ランダム系を統計的に考察するための理論。導電性複合材料の導電性機構を説明するために良く用いられる。対象とする物質の分散凝集状態と導電性との関係を統計的に処理する理論。
MD方向	Machine direction	射出成形などにおいて成形品を作製した場合の射出方向
TD方向	Transverse direction	射出成形などにおいて成形品を作製した場合の射出方向に垂直な方向
ラウンドロビンテスト	Round Robin test	試験結果の妥当性を評価するために、まったく同じと考えてよい材料を各試験所に配布して、いっせいに試験して結果を持ち寄って比較する、持ち回り試験。

近接場光	Near field light	光の波長よりも微小な物質構造に光を当てた際に、その物質構造の表面に発生するが 遠くへ伝搬してゆくことがない、特殊な光のことである。
熱浸透率	Heat penetration rate	樹脂成形の時など、高温の樹脂が冷却された型で成形する場合の型の表面温度を推定する時などに使う指数。この指数が使われるのは、熱浸透率が互いに異なった物質が接しているときに、接触面を通して熱が移動するときで、たとえ熱伝導率及び体積熱容量が異なっても、2つの物質の熱浸透率が等しいときは（それらの積が等しければ）、熱の拡散は境界面が存在しないのと同様に振る舞う。
フラクタル次元	Fractal dimension	図形を評価するために導入されたもの。フラクタル次元は、数学的に定義された図形などでは、厳密な値が算出できることもあるが、海岸線評価などの場合は、フラクタル次元自体が測定値になる。比較的なめらかな海岸線では、フラクタル次元は 1 に近い値となり、リアス式海岸などの複雑な海岸線では、それよりは大きな値となり、その値により図形の複雑さが分かる。

○Ⅲ. 4 研究開発項目毎の成果（東レ・ダウコーニング（株）該当分）

用語（日本語）	English	用語の説明
水熱合成	Hydrothermal synthesis	水を反応基質とし、その沸点以上の温度で化学反応させる合成法。通常 100–200℃の温度域で行われる。
TEM	Transmission electron microscopy	透過型電子顕微鏡およびその観察写真
EDS	Energy Dispersive X-ray Spectroscopy	エネルギー分散型 X 線分光法。TEM と組み合わせることにより、局所の元素分析を行うことができる。
TGA	Thermogravimetric analysis	熱重量分析。材料の耐熱性を議論する最も簡便な手法。
SiC	Silicon carbide	炭化ケイ素。次世代半導体のひとつとして注目されている。
熱膨張係数	CTE: Coefficient of thermal expansion	高分子材料をある温度まで加熱した際に、元の長さに比べてどの程度膨張したかを表す係数。Ppm で表す場合が多い。
熱抵抗値	Thermal resistance	実際の使用状況に近い状態で、材料の熱伝導性の

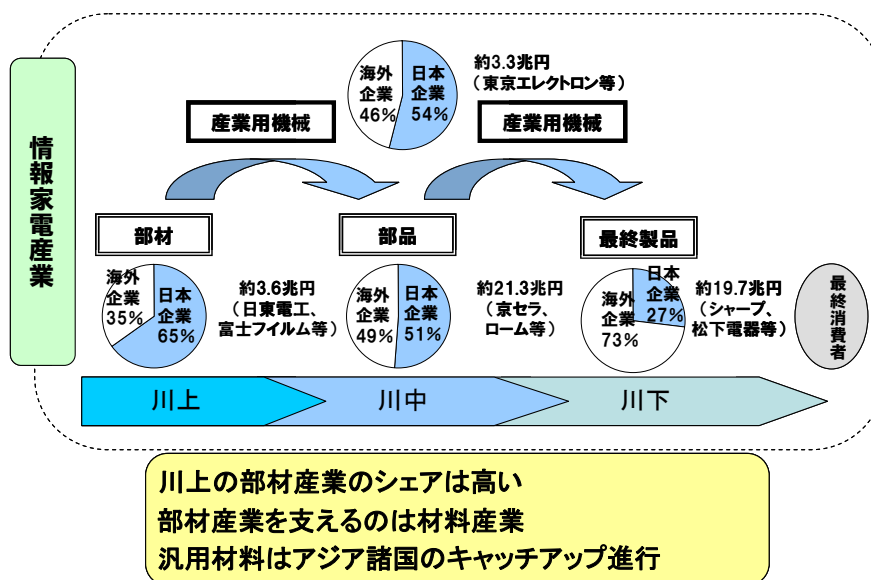
		良し悪しを判断する特性値。概算するには、熱伝導率の逆数を取ればよい。
--	--	------------------------------------

# I. 事業の位置付け・必要性について

## 1. NEDO の関与の必要性・制度への適合性

### 1. 1 NEDO が関与することの意義

我が国の材料産業は、国際的に高い技術力と競争力を有し、経済社会の発展を支えている。しかし、川下産業との取引のオープン化に伴いユーザーとの連携の希薄化が進行する一方で、汎用的な材料技術はアジア諸国の技術力向上によるキャッチアップが進行している。そのため我が国において産学官を含む連携の強化（川上川下の垂直連携、材料創製と加工の水平連携など）を図ることと、次世代の材料分野での高付加価値化に資する高度な技術開発が、今後のイノベーション促進に必要不可欠な課題となっており、我が国の国際競争力を強化し、新たな市場や雇用を創出する源泉として期待されている。（図1.1-1）



### 高度な材料・基盤技術開発必要

図1.1-1 高度な材料開発の必要性（経済産業省作成資料）

有機・無機ハイブリッド材料は、半導体関連部材（パワーデバイス材料）、光学部材（空間光制御部材）、ディスプレイ部材（低屈折率材料）などを支える基盤技術として大幅な性能向上が期待されている。これまでの有機・無機ハイブリッド材料については、有機材料に無機材料を混ぜていくと、無機材料の性質が付加されるものの、有機材料の長所が失われるものであり、大幅な性能向上は望めなかった。そこで、ナノテクノロジーを活用し、ナノレベルでの界面・空間・構造を制御することにより、これまでにない高度な機能を有する有機・無機ハイブリッド材料開発の機運が高まっている。

本プロジェクトでは、有機・無機ハイブリッド材料に着目し、「単なるハイブリッドではなく、従来材料ではなし得なかったトレードオフ（相反機能）をナノレベルでの界面・分散・構造制御で解消し、相反機能を合目的的に制御・実現することができる技術」

を超ハイブリッド材料技術（ナノレベル構造制御による相反機能材料技術）と定義し、①超ハイブリッド材料創製技術開発、②相反機能発現基盤技術開発、③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発、④材料設計に資する統合評価・支援技術開発を実施し、我が国材料産業の発展に大きく貢献することを目的とする。

超ハイブリッド材料の実現は、従来材料では不可能であった高度な新材料が期待でき、将来、幅広い産業分野で利用される基盤技術ができる可能性がある。しかしながら、産業界の強いニーズである新規製品・サービスを創造するためには、従来の試行錯誤的な材料開発手法ではリソースの投資効率鈍化やエネルギーや環境への負荷増大が避けられない。また、高度なナノテクノロジーを駆使する材料開発は難易度が高く、投資規模も大きく、開発期間も長くなることが予想されるため、民間企業だけの開発ではリスクが非常に大きい。以上の理由により民間投資のみに任せるのではなく、産学の科学的知見、研究開発力を結集して、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下NEDOと略記する。）による国家的、集中的な研究開発プロジェクトにより、超ハイブリッド材料技術の開発を加速して実施する必要がある（図1. 1-2）。

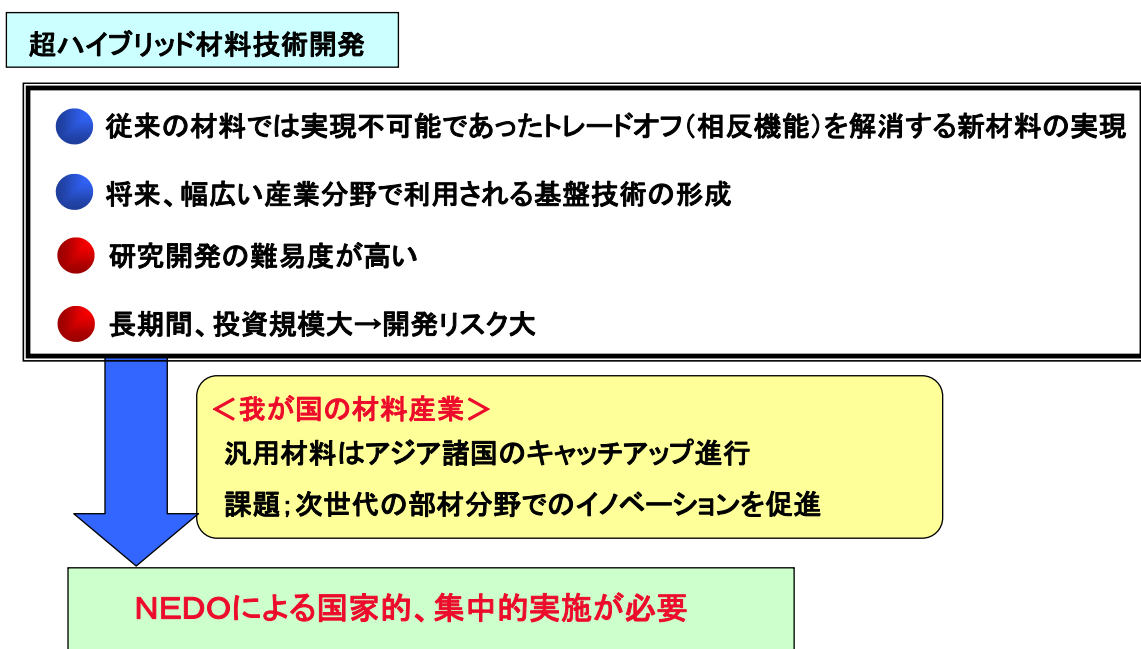


図1. 1-2 NEDOが関与することの意義

## 1. 2 実施の効果

- (1) 研究開発費用（提案時）：5年間で約40億円（平成19年度～平成23年度）
- (2) 効果：電気電子材料、光学部材、構造部材の分野に関連して、プロジェクト終了の1年前の2010年度に国内（海外展開含む）で年間約5000億円以上

の市場規模が予測されており、本事業の成果により、それ以上の経済押し上げ効果が見込まれる。

富士キメラが出版した『2006年ハイブリッドマテリアルの現状と将来展望』及び『2007年機能性高分子フィルムの現状と将来展望』に基づき超ハイブリッド材料に関する市場規模予測を表1. 2-1にまとめた。<sup>1)</sup><sup>2)</sup>ここで取り上げた用途分野の多くは今後も高い成長が見込まれる。これらの材料は、電気・電子産業・自動車産業等を支える基盤となるものである。これらの材料が切り開く産業は、技術革新が激しく市場サイクルの短い分野でもあるので、時期を逸しないよう早期の目標達成が重要である。

表1. 2-1 超ハイブリッド材料の市場規模予測

分野	ディスプレイ (電気・電子)	機構材料 (自動車・電気・電子)	光学	その他工業材料	合計
用途	ハードコート、 透明導電フィルム等	ポリマー系 ナノコンジット材料	有機・無機ハイブリッド 高低屈折率材料 バリア性透明フィルム 等	燃料電池車用 セパレータ、 電解質膜等	
市場予測(億円)	4151	290	504	194	5139

## 2. 事業の背景・目的・位置づけ

### 2. 1 事業の背景

急速に進展する情報家電、自動車産業等の高度な要求を満たすパワーデバイス、耐熱材料、高度情報通信に不可欠な光学材料等でトレードオフすなわち、相反機能（既存材料では同時に発現させるのが困難で材料特性上その機能が相反する複合機能を言う。）を有する材料が求められている。例えば、高熱伝導性と易成形性、絶縁性と易成形性、高（低）屈折率と易成形性等のトレードオフの関係にある材料に関するニーズが非常に強くなってきている（図2. 1-1）。

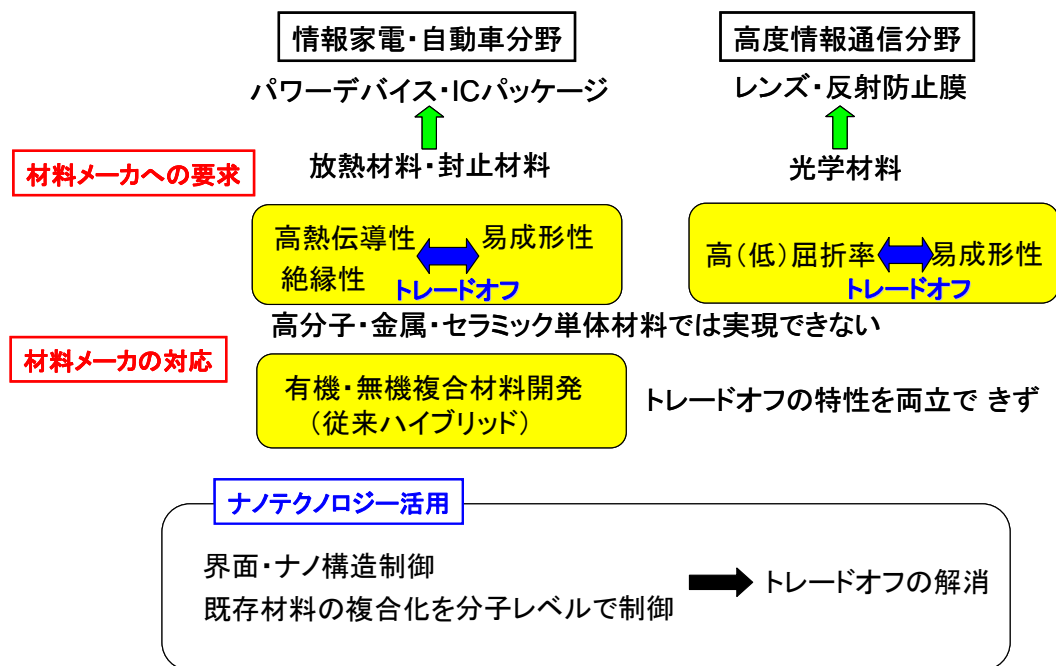


図2. 1-1 ユーザー要求とメーカー対応の状況

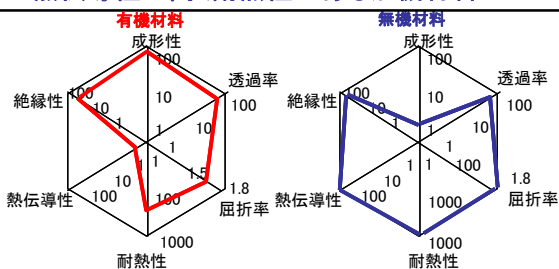
高分子、金属、セラミックス等の材料を用いて、ハイブリッド材料の開発が行われてきているが、既存の手法の延長線上にある技術では困難になりつつあり、界面・構造、あるいは既存材料の複合化を分子レベルで制御することにより、これらのトレードオフの解消が期待されている。

図2. 1-2に従来材料と超ハイブリッド材料の違いを示した。有機材料に無機材料を混ぜていくと無機材料の性質が付加されるものの、有機材料の長所が失われるというのが従来材料の欠点であった。例えば、成形性の良い有機材料と熱伝導性の良い無機材料をただ単に混ぜ合わせると、成形性と熱伝導性は両立しない。無機・有機複合材料のトレードオフ（相反）機能である成形性と熱伝導性、成形性と耐熱性、成形性と屈折率が両立する超ハイブリッド材料があれば、電気・電子材料、工業材料、光学材料分野において、部材の高性能化が図れ、日本の国際競争力向上に貢献すると考えられる。図2. 1-3に高熱導材料、高屈折率材料を例とした超ハイブリッド材料の概要を示す。



### 従来材料

- ★ 軽くて成形性・加工性の良い有機材料
- ★ 熱伝導性が高く耐熱性がある無機材料



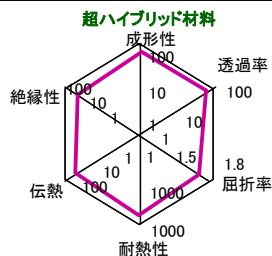
- 成形性が良く熱伝導性の高い材料があれば...
- 成形性が良く耐熱性の高い材料があれば
- 成形性が良く屈折率の高い材料があれば...



トレードオフ  
従来材料では両方を実現することは困難

### 超ハイブリッド材料

- ★ 軽くて加工性の良い熱伝導性が高く、耐熱性がある超ハイブリッド材料



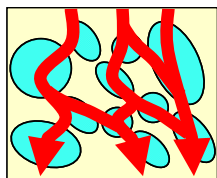
トレードオフの解消により大幅に高性能化

電子・電気材料	その他工業用材料	光学材料
インバータ	駆動部材	レンズ
放熱性の向上によるインバータの小型化と性能向上	放熱性の向上による燃料電池車用高性能小型モーターハウジング	高屈折率化による部品の小型化

図 2. 1-2 従来材料と超ハイブリッド材料の違い

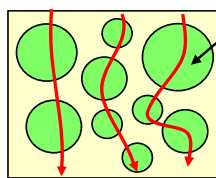
### 高熱伝導材料(電子・電気分野)

超ハイブリッド  
ナノ粒子表面・配列制御  
パス形成



高熱伝導・易成形性

従来材料

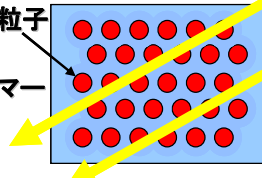


低熱伝導・難成形性

熱伝導 ↔ 成形性  
トレードオフ

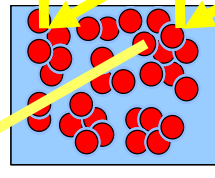
### 高屈折率材料(光学分野)

超ハイブリッド  
ナノ粒子表面制御  
高濃度・完全分散



高屈折率・高透過率  
易成形性

従来材料



高屈折率・低透過率  
難成形性

高屈折率 ↔ 透過率  
成形性  
トレードオフ

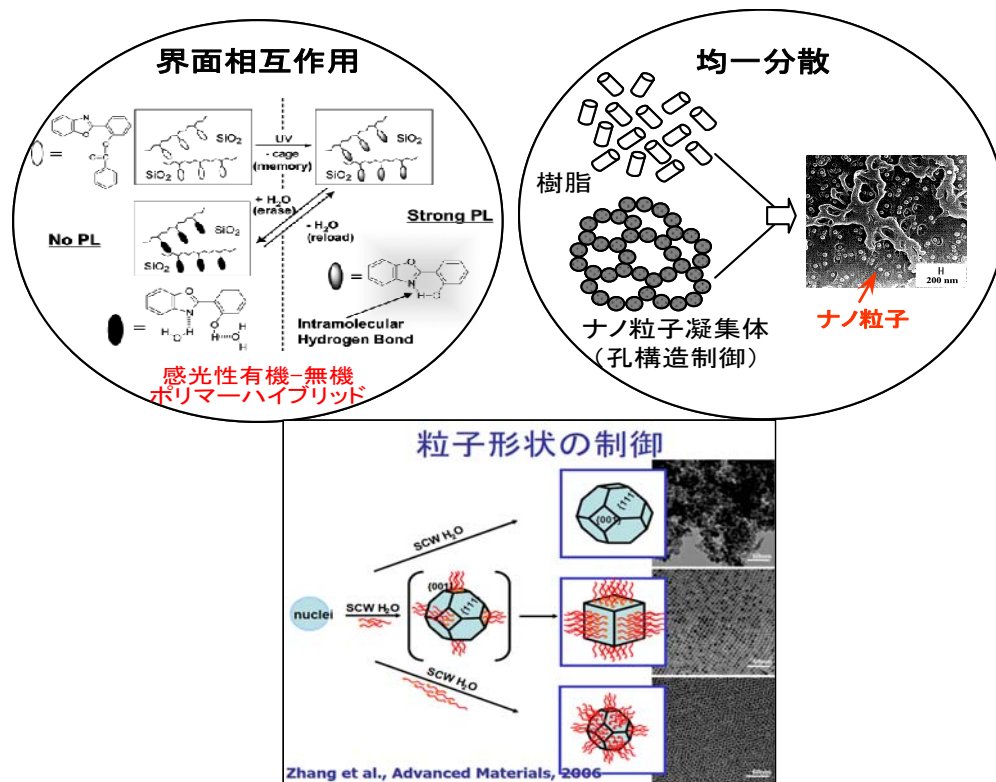
超ハイブリッド材料  
界面・ナノ構造制御によりトレードオフ(相反)を解消した有機・無機複合材料

図 2. 1-3 超ハイブリッド材料の概要

## 2. 2 事業の目的

本プロジェクトは有機・無機ハイブリッド材料に着目し、「単なるハイブリッド化ではなく、従来材料ではなし得なかったトレードオフ（相反機能）をナノレベルでの界面・分散・構造制御（図2. 2-2ご参照）で解消し、相反機能を合目的的に制御・実現することができる技術あるいはそれに資する技術」を超ハイブリッド材料技術（ナノレベル構造制御による相反機能材料技術）と定義し、①超ハイブリッド材料創製技術開発、②相反機能発現基盤技術開発、③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発、④材料設計に資する統合評価・支援技術開発を実施し、極めて広範囲な産業領域に波及する材料・部材領域について、ユーザー製造業等との連携（垂直連携）を促進する産学連携のプロジェクト体制で実施することで、高度な部材産業群の「すり合わせ力」の強化を図り、我が国材料産業の発展に大きく貢献することを目的とする。（図2. 2-3）

本技術の確立により、相反機能の両立を可能にした超ハイブリッド材料の実現など、将来、幅広い産業分野で利用される共通基盤技術の形成が見込まれる。



1) 富士キメラ総研：『2007年機能性高分子フィルムの現状と将来展望』

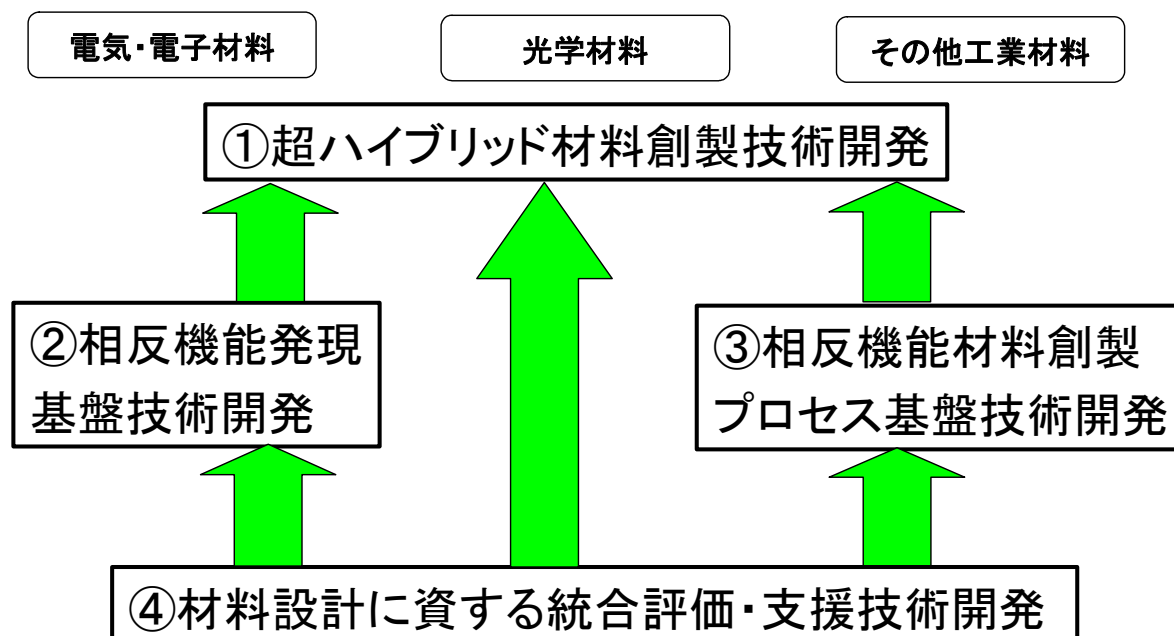


図 2. 2-3 事業の内容と目的

### 2. 3 事業の位置付け

本プロジェクトは、経済産業省が推進する7つの「イノベーションプログラム」（図 2. 3-1）の内、『情報通信、ライフサイエンス、環境、エネルギーなどあらゆる分野に対して高度化あるいは不連続な革新（ジャンプアップ）をもたらすナノテクノロジー及び革新的部材技術を確立するとともに、その実用化や市場化を促進することで、我が国産業の国際競争力の維持・強化や解決困難な社会的課題の克服等を可能にすること』を目的とした「ナノテク・部材イノベーションプログラム」の一環として取り組むものである（図 2. 3-2）。

1. 「イノベーションプログラム」の中での体系的推進 (Inside Management & Accountability)
- 経済産業省の全ての研究開発プロジェクトは、政策目標毎に7つの「イノベーションプログラム」の下で体系的に推進。
  - 各プログラムの中で、政策目標に向けたプロジェクトの位置付けと目標の明確化、市場化に必要な関連施策(規制改革、標準化等)との一体化を図り、イノベーション実現に向け各プロジェクトを効果的に推進。
2. 「技術戦略マップ」に基づく戦略的企画立案 (Outside Communication & Networking)
- 先端産業技術動向を把握し、国が取り組むべき技術課題とイノベーションの道筋を明確化するため、産学官で協働するロードマッピング手法を導入(『技術戦略マップ 2005/2006/2007/2008』)。
  - 研究開発プロジェクトの選定に当たっては、イノベーションプログラムにおける政策目標を基に技術戦略マップに位置付けられた重要技術課題を抽出し戦略的に企画立案。

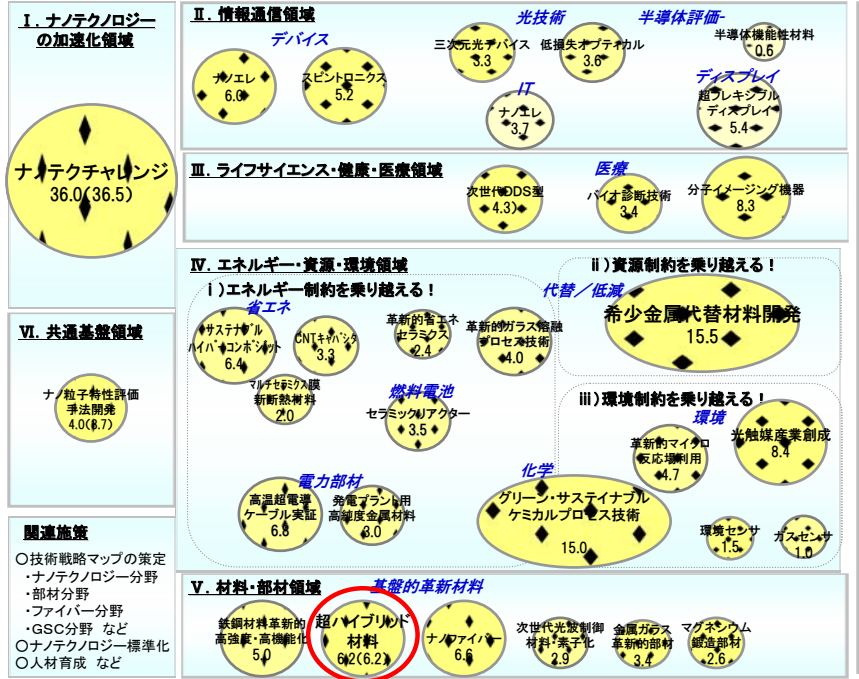
<b>IT IPG</b> ①ITコア技術の革新 94億円 ②省エネ革新 42億円 ③情報爆発への対応 44億円 ④情報システムの安全性等 63億円 21年度予算 244億円	<b>ナノテク・部材 IPG</b> ①ナノテク加速化領域 36億円 ②情報通信領域 28億円 ③ライフサイエンス・健康・医療領域 16億円 ④エネルギー・資源・環境領域 78億円 ⑤材料・部材領域 27億円 ⑥共通領域 4億円 21年度予算案 188億円	<b>環境安心 IPG</b> ①地球温暖化防止新技術 60億円 ②3R 33億円 ③環境調和産業バイオ 57億円 ④化学物質総合評価 11億円 ⑤共通領域 4億円 21年度予算案 165億円	<b>心 IPG</b> ①航空機産業の基盤技術力の維持・向上 233億円 ②宇宙産業の国際競争力強化 87億円 21年度予算案 320億円
<b>エネルギー IPG</b> ①総合エネルギー効率の向上 707億円 ②運輸部門の燃料多様化 278億円 ③新エネルギー等の開発・導入促進 369億円 ④原子力等利用の推進とその大前提となる安全の確保 268億円 ⑤化石燃料の安定供給確保と有効かつクリーンな利用 479億円 21年度予算 1,281億円※2	<b>航空機・宇宙産業 IPG</b> ①航空機産業の基盤技術力の維持・向上 233億円 ②宇宙産業の国際競争力強化 87億円 21年度予算案 320億円		

あらゆる分野に対して高度化、不連続な革新をもたらすナノテクノロジー、革新的部材技術を確立

図 2. 3-1 イノベーションプログラムにおける本プロジェクトの位置付け

**ナノテク・部材イノベーションプログラム** 【平成21年度予算額：188億円】

- あらゆる分野に対して高度化・不連続な革新をもたらすナノテクノロジー・革新的部材技術を確立する。
- 我が国産業の国際競争力の維持・強化や解決困難な社会的課題の克服を可能とする。



- IPGの目標**
- ナノテクによる非連続技術革新- 世界に先駆けてナノテクノロジーを活用した不連続な技術革新を実現する。
  - 世界最強部材産業による価値創出- 我が国部材産業の強みを更に強化することで、他国の追随を許さない競争優位を確保するとともに、部材産業の付加価値の増大を図る。
  - 広範な産業分野での付加価値増大- ナノテクノロジーや高機能部材の革新を先導することで、これら部材を活用した情報通信、ライフサイエンス、環境、エネルギーなどの幅広い産業の付加価値の増大を図る。
  - エネルギー・資源制約などの課題解決- 希少金属などの資源制約の打破、圧倒的な省エネルギー社会の実現など、解決困難な社会的課題の克服を目指す。

図 2. 3-2 ナノテク・部材イノベーションプログラムにおける本プロジェクトの位置付け

参考文献

- 1) 富士キメラ総研：『2006年ハイブリッドマテリアルの現状と将来展望』
- 2) 富士キメラ総研：『2007年機能性高分子フィルムの実状と将来展望』

## II. 研究開発マネジメントについて

### 1. 事業の目標

①超ハイブリッド材料創製技術、②相反機能発現基盤技術、③相反機能材料創製プロセス基盤技術、④材料設計に資する総合評価・支援技術の4技術を確立し、これまででない相反機能の両立を可能にした超ハイブリッド材料を実現し、我が国材料産業発展に大きく貢献する。

以下、最終目標（平成23年度末）の概要を記載する。

#### ① 超ハイブリッド材料創製技術開発

研究開発項目②相反機能発現基盤技術開発、研究開発項目③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発、研究開発項目④材料設計に資する統合評価・支援技術開発の成果をもとに、具体的ないくつかの部材について従来材料では実現できなかったトレードオフを解消するとともに、市場評価が可能な成果物を供試し、市場（ユーザー）から、客観的実用化研究課題を抽出する。また、単なる相反機能の解消ではなく、相反機能を制御・実現する技術を開発する。

#### ② 相反機能発現基盤技術開発

従来材料では実現できなかったトレードオフを解消するため、相反機能発現に必要な界面制御、分散、配向制御等の基盤技術を開発・確立する。

#### ③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

官能基導入ナノ粒子等の高効率合成プロセス及び均一分散・配向・配列プロセス基盤技術を開発し、これらプロセスが連動した相反機能材料創製プロセス基盤技術を開発・確立する。

#### ④ 材料設計に資する統合評価・支援技術開発

相反機能を発現する、材料・部材の基本構造の特性解析及び設計に関する統合評価・支援技術を確立する。

### 2. 事業の計画内容

#### 2. 1 研究開発の内容

##### 2. 1. 1 研究開発の目標

研究開発項目ごとに記載する。

#### ①「超ハイブリッド材料創製技術開発」

##### ・研究開発の必要性

急速に進展する情報家電、自動車産業等の高度な要求を満たすパワーデバイス、耐熱材料、高度情報通信に不可欠な光学材料等でトレードオフすなわち、相反機能（既存材料では同時に発現させるのが困難で材料特性上その機能が相反する複合機能を言う。例えば絶縁性と熱伝導性など）を有する材料等が求められている。

高分子、金属、セラミックス等の個別の材料では、新素材の開発が期待される一方で、様々な観点から、この要求（相反機能）を満足させることは困難になりつつある。例えば、新たに複合材料を創成する場合でも、既存の手法である剪断力による混連等の手法では限界があり、目標とする性能を達成すること、すなわちトレードオフを解消することは困難である。

そこで、新素材の開発を標榜するのではなく、ナノテクノロジーを活用しナノメートルでも精密な分子設計（構造制御）を行い、既存材料の複合化を分子レベルで制御することにより、トレードオフの解消を図る。

#### ・研究開発の具体的内容

##### （１） 達成手法の選択・提案・実施

研究開発項目④の「材料設計に資する統合評価・支援技術開発」を活用し、効率的に材料設計と評価を実施するとともに、研究開発項目②の「相反機能発現基盤技術開発」、研究開発項目③の「相反機能創成プロセス基盤技術開発」の成果を活用し、相反機能材料を創成、すなわち超ハイブリッド材料創製に資する要素技術を開発する。

開発部材の使用環境も考慮した機能評価手法を提案するため、上記研究開発項目②、③、④から、最適な達成手段を選択し、あるいは新規に提案し、機能評価結果を材料設計に反映させるとともに目標値を達成する。

##### （２） 市場評価可能とする成果物の供試

（１）の目標達成を客観的に判断できるように、市場評価を受けて実用化するための課題を客観的に抽出するために、市場評価が可能な条件（形態・数量）を明らかにし、成果物を供試する。

#### ・達成目標

[ 中間目標（平成 21 年度末） ][ 最終目標（平成 23 年度末） ]

##### （１） 機能合目的的達成手法の提案

以下の（Ⅰ）～（Ⅲ）に示す分野の部材について、下記の間目標値を達成する一手法以上を提案すること。ただし、単に目標値を達成するものではなく、相反機能を合目的的に実現する手法であること。

##### （Ⅰ）電気・電子材料分野

[ 1 ] パワーデバイス周辺材料（モーター、自動車電装品）

[ 中間目標（平成 21 年度末） ]

熱伝導率 $\geq 30\text{W/mK}$ 、耐熱性 $\geq 300\text{ }^\circ\text{C}$ 、絶縁破壊電圧 $\geq 30\text{kV/mm}$ 、易成型性であること。

##### 【設定理由】

熱伝導率については、アルミナ相当値でデバイス構造によりセラミック代替可能な目標数値。耐熱性については SiC デバイス使用可能温度（ $250\text{ }^\circ\text{C}$ ）以上。絶縁破壊電圧についてはインバータの現状要求値（ $20\text{ kV}$ ）を十分越える値に設定。

[ 最終目標（平成 23 年度末） ]

熱伝導率 $\geq 40\text{W/mK}$ 、耐熱性 $\geq 400\text{ }^\circ\text{C}$ 、絶縁破壊電圧 $\geq 50\text{kV/mm}$ 、易成型性であること。

【設定理由】

熱伝導率については、アルミナ相当値でデバイス構造によらずセラミック代替可能な目標数値。耐熱性については電力分野での SiC デバイス使用可能温度（ $400\text{ }^\circ\text{C}$ ）以上。絶縁破壊電圧についてはインバータの高電圧化に対応した余裕のある値に設定。

[ 2 ] IC パッケージ周辺材料（熱伝導材料、封止材）

[ 中間目標（平成 21 年度末） ]

〈非絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 40\text{W/mK}$ 、

接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{MPa}$ （at  $260\text{ }^\circ\text{C}$ ）

【設定理由】

熱伝導率については従来技術での到達限界値と予測している  $20\text{ W/mK}$  の 2 倍値。接着強度は接着剤（シート）として必要不可欠な強度として設定。

〈絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 7\text{ W/mK}$ 、体積抵抗率 $\geq 10^{11}\ \Omega\cdot\text{cm}$ （at  $150\text{ }^\circ\text{C}$ ）、

接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{ MPa}$ （at  $260\text{ }^\circ\text{C}$ ）

【設定理由】

熱伝導率については他特性の制約を考慮し、従来手法での到達限界と予測している  $5\text{ W/mK}$  を超える値を設定。体積抵抗率は電気絶縁材料として必要不可欠な数値として設定。接着強度は接着剤（シート）として必要不可欠な強度として設定。

[ 最終目標（平成 23 年度末） ]

〈非絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 60\text{W/mK}$ 、

接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{MPa}$ （at  $260\text{ }^\circ\text{C}$ ）

【設定理由】

熱伝導率については電気絶縁性が不要であることを前提にハイリスクではあるが到達可能レベルとして設定。接着強度は接着剤（シート）として必要不可欠な強度として設定。

〈絶縁タイプ〉 熱伝導率 $\geq 15\text{W/mK}$ 、体積抵抗率 $\geq 10^{11}\ \Omega\cdot\text{cm}$ （at  $150\text{ }^\circ\text{C}$ ）、

接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{MPa}$ （at  $260\text{ }^\circ\text{C}$ ）

【設定理由】

熱伝導率については数年先の市場要求値を上回る数値を設定。体積抵抗率は電気絶縁材料として必要不可欠な数値として設定。接着強度は接着剤（シート）として必要不可欠な強度として設定。図 2. 1. 1-1 にハイブリッド材料の体積抵抗率と熱伝導率との関係を示す。目標は従来ハイブリッド材料の値から、並外れて高く、不連続な技術革新が必要である。

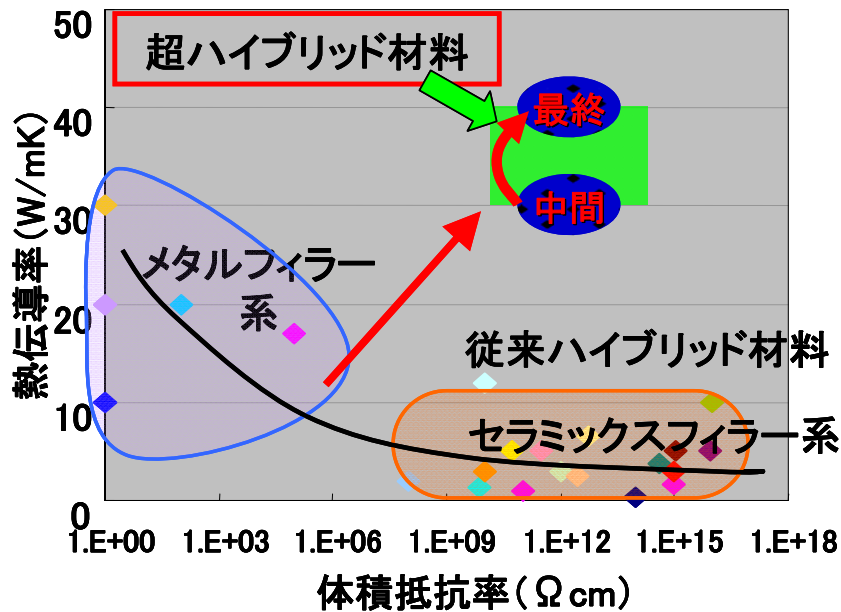


図 2. 1. 1 - 1 体積抵抗率と熱伝導率との関係

[ 3 ] 高放熱性材料

[ 中間目標 (平成 2 1 年度末) ]

熱抵抗値  $\leq 0.03^{\circ}\text{C} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$  (厚さ 10 - 100  $\mu\text{m}$ )、硬化前粘度  $\leq 200\text{Pa} \cdot \text{s}$

[ 最終目標 (平成 2 3 年度末) ]

熱抵抗値  $\leq 0.01^{\circ}\text{C} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$  (厚さ 10 - 100  $\mu\text{m}$ )、硬化前粘度  $\leq 100\text{Pa} \cdot \text{s}$

【設定理由】

熱伝導性充填材を配合したポリシロキサン系放熱材料の熱抵抗値は  $0.08 \sim 0.15^{\circ}\text{C} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$  であるが、数年後には  $0.02 \sim 0.05^{\circ}\text{C} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$  の値が要求されることを予想して設定。ポリシロキサンの成形加工性を考慮し、硬化前粘度を設定。

[ 4 ] 高耐熱材料

[ 中間目標 (平成 2 1 年度末) ]

貯蔵弾性率の低下率 (室温と  $300^{\circ}\text{C}$  での値の比較)  $\leq 10\%$

熱膨張係数  $\leq 2.0 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ 、硬化前粘度  $\leq 200\text{Pa} \cdot \text{s}$

[ 最終目標 (平成 2 3 年度末) ]

貯蔵弾性率の低下率 (室温と  $300^{\circ}\text{C}$  での値の比較)  $\leq 10\%$

熱膨張係数  $\leq 1.5 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ 、硬化前粘度  $\leq 100\text{Pa} \cdot \text{s}$

【設定理由】

シロキサン系材料は一般に耐熱性は高いが、組成を最適化することにより、 $300^{\circ}\text{C}$  での弾性率低下をかなり抑制できると考え上記の貯蔵弾性率の低下率目標値を設定。熱膨張係数については、充填材を含まないポリシロキサンの値が  $15 \sim 25 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$  であるが、有機系ハイブリッド材料の値が  $1.0 \sim 2.0 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$  であることから、競合材料となり得るために必要な値として設定。ポリシロキサンの成形加工性を考慮し、硬化前粘度を設定。

(II) 光学材料分野



[ 1 ] 低屈折率材料（機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、光導波路）

[ 中間目標（平成 21 年度末） ]

屈折率 $\leq 1.42$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3H$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$

易成形性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10g/10min$

【設定理由】

屈折率については反射防止フィルム用途を想定して設定。鉛筆光度については光学レンズとして実用レベルの値。全光線透過率については光学ガラスと同等レベルの値。易成形性については現行樹脂成形条件を設定。

[ 最終目標（平成 23 年度末） ]

屈折率 $\leq 1.4$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 4H$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$

易成形性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10g/10min$

【設定理由】

屈折率については反射防止フィルム用途を想定して設定。鉛筆光度については光学レンズとして実用レベルの値。全光線透過率については光学ガラスと同等レベルの値。易成形性については現行樹脂成形条件を設定。

[ 2 ] 高屈折率材料（機能性光学薄膜、ディスプレイ基板、レンズ）

[ 中間目標（平成 21 年度末） ]

屈折率 $\geq 1.6$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3H$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$

易成形性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10g/10min$

【設定理由】

屈折率については現行樹脂材料の高屈折率レベルを設定。（高屈折率粒子が 30wt % 以上で分散が可能となった場合の屈折率を想定。）鉛筆光度については光学レンズとして実用レベルの値。全光線透過率については光学ガラスと同等レベルの値。易成形性については現行樹脂成形条件を設定。

[ 最終目標（平成 23 年度末） ]

屈折率 $\geq 1.7$ 、鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3H$ 、全光線透過率 $\geq 90\%$

易成形性 MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10g/10min$

【設定理由】

屈折率については現行樹脂材料では未達成レベルを設定。（高屈折率粒子が 60wt % 以上で分散が可能となった場合の屈折率を想定。）鉛筆光度については光学レンズとして実用レベルの値。全光線透過率については光学ガラスと同等レベルの値。易成形性については現行樹脂成形条件を設定。

図 2. 1. 1-2 に光学材料の目標最終を示した。汎用の光学樹脂材料の屈折率は 1.45 ~ 1.6 弱程度である。低屈折率化の方法としてフッ素化の手法があり、現状 1.32 レベルの材料が商品化されているが、成形法がスピコートと限定されている。したがって、低屈折率と成形性がトレードオフの関係になる。高屈折率化の手法としてイオウの導入や高屈

折率ナノ粒子の分散がある。イオウの導入で高屈折率化は可能であるが黄色に着色するため透過率が低下する。ナノ粒子分散の手法でも従来の方法では凝集により光散乱が発生し透過率が低下する。即ち、高屈折率と透過率がトレードオフになる。最終目標はこれらトレードオフを解消するものである。

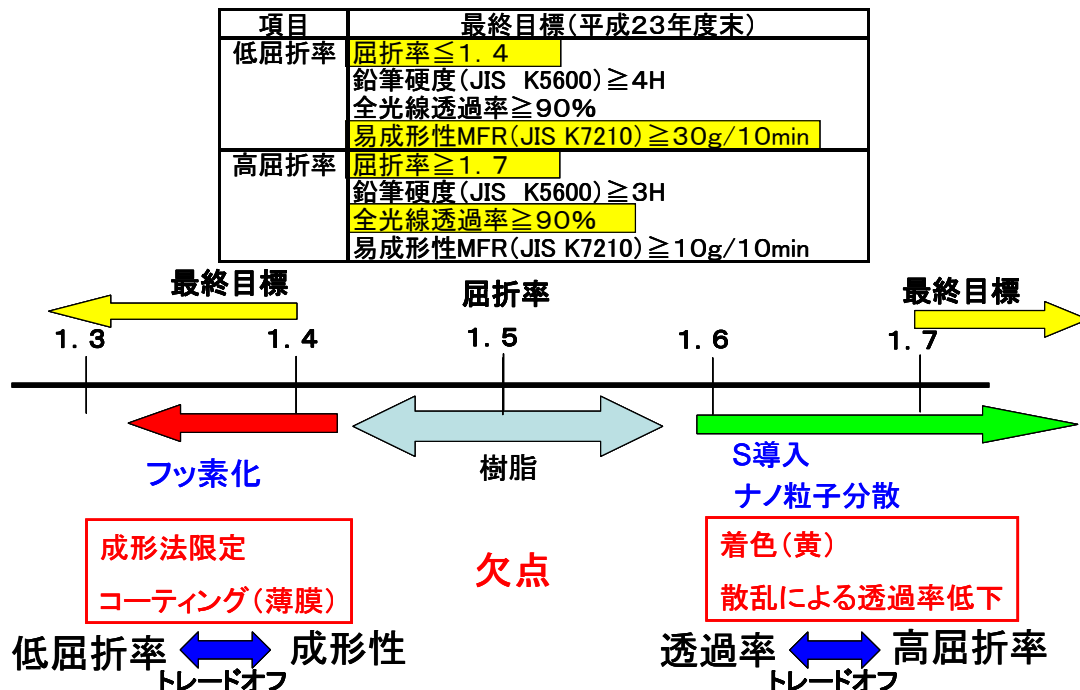


図2. 1. 1-2 光学材料の最終目標

### (Ⅲ) その他工業材料分野

[ 1 ] 放熱性材料 (液晶画面用 LED 放熱用、燃料電池車・ロボット駆動部放熱用)

[ 中間目標 (平成21年度末) ]

熱伝導率  $\geq 20W/mK$ 、成形粘度  $\leq 1000Pa \cdot s$ 、耐衝撃性  $\geq 15J/m$ 、  
比重  $\leq 3.5$ 、体積抵抗率  $\geq 10^{12} \Omega \cdot cm$ 。

[ 最終目標 (平成23年度末) ]

熱伝導率  $\geq 40W/mK$ 、成形粘度  $\leq 100Pa \cdot s$ 、耐衝撃性  $\geq 24J/m$ 、  
比重  $\leq 2.5$ 、体積抵抗率  $\geq 10^{12} \Omega \cdot cm$ 。

#### 【設定理由】

LED デバイスの一定照度の確保と温度上昇抑制の観点から、熱伝導率目標を設定。蛍光灯 (76W : 7880lm) の明るさを得るためには従来の高熱伝導プラスチック材料

(1 ~ 2W/mK) をパッケージ用いた場合 LED (100lm/W) 40個必要。中間目標値で1/10に低減可能。最終目標値ではさらに温度上昇を55℃以下に抑制可能。成形粘度に関しては中間目標ではトランスファー成形が最終目標では射出成形が可能であることを目標に設定。耐衝撃性については、中間目標では添加するナノ材の表面処理が不十分であるとして、最終目標では表面処理技術の高度化による高分散性になると考え、エポキシ樹脂と変わらない値を設定。比重については、中間目標ではアルミナ (比重 : 3.8) と比較

して考え 3.5 以下を最終目標ではアルミニウム（比重：2.7）と比較して考え 2.5 以下を選んだ。体積抵抗率についてはエポキシ樹脂など通常の電気絶縁性プラスチックの値を目標値とした。

## （２） 市場評価可能とする成果物の供試

（１）の目標達成を客観的に判断できるように、市場評価が可能な条件（形態・数量）を明らかにし、成果物を供試する。市場評価を受けて、実用化するための課題を客観的に抽出する。

## ②「相反機能発現基盤技術開発」

### ・研究開発の必要性

ナノメートルサイズにおける精密な分子設計（構造制御）の進歩により既存材料の複合化を分子レベルで制御すれば、材料特性が向上する可能性が示されてきた。各材料の特性を重ね合わせただけの従来型複合材料を超えた新たな機能創出を図るためには、分子レベルで表面修飾や界面制御等を行うことが必要であり、ナノレベルでの精密な材料設計、材料構造制御の手法の開発が強く求められている。

### ・研究開発の具体的内容

#### （１）有機・無機材料界面の制御技術

電気・熱伝導等を発現させつつ無機ナノ粒子等表面に有機官能基を結合させる機構の解明とそれに関する基盤技術、並びに有機材料と無機材料の界面での相互作用等を制御する機構の解明とそれに基づく界面制御技術を開発する。

#### （２）ナノ空間制御技術

層間化合物・空孔化合物・ dendrimer 等をナノ形成単位とし、これらを有機マトリックスとし、サイズ・形状・配列等が制御されたナノ中空構造材料とするなどにより、相反機能を実現するナノ空間制御技術を開発する。

#### （３）ナノ構造制御技術

外場付与・自己組織化等により、無機ナノ粒子等の有機マトリックス中での分散・配向・配列等を制御することにより相反機能を発現させる無機材料を主とした基盤技術を開発する。

#### （４）ナノ空間・構造制御手法最適化技術

ナノ空間・構造が合成過程でどのように形成されているかを in-site に解析し、（１）、（２）、（３）の機構解明の成果を援用も得つつ、また研究開発項目④の総合評価・支援技術と共同し、相反機能を発現する制御手法最適化技術を確立する。

### ・達成目標

[ 中間目標（平成 21 年度末） ]

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能の発現手法を提供し、中間目標達成に寄与する。

[ 最終目標（平成23年度末） ]

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標に達成する相反機能の発現機構を明らかにし、それに基づき相反機能発現材料のナノ空間・構造制御手法を確立する。

### ③「相反機能材料創製プロセス基盤技術開発」

#### ・研究開発の必要性

開発された材料を、用途に応じた部材として利用するためには、その構造、機能、形状等を制御するとともに、生産量・コスト面でユーザー等からの要望に応えることが求められている。このため、実用化段階で予測される超ハイブリッド材料への多様な用途、機能等のニーズに対応して、各種の相反機能材料を創成できるプロセス技術の確立が必要である。

#### ・研究開発の内容

超ハイブリッド材料の分子レベルの構造制御により相反機能を発現する材料創製プロセスを開発する。プロセスの高度・精密制御を可能にするため、プロセスと一体になった in-site測定技術、プロセス設計技術を併せて開発する。

#### (1) 官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術

##### i) 粒子等表面に有機官能基を大量、高速に導入する技術

高分子中への高濃度、完全分散を目的とし、マイクロ・ナノメートルサイズの粒子等の表面に、有機官能基を大量、高速、経済性良く導入する基盤技術を確立する。

##### ii) 有機官能基を導入したナノ粒子等の in-site 合成技術

上記 i) の知見に基づき、目的とするナノ粒子等を合成しつつ、in-site で単一粒子表面に目的の有機官能基を導入する基盤技術を確立する。

##### iii) 有機修飾ナノ粒子等の大量、高速、精密合成技術

上記 i)、ii) の有機無機修飾に関する知見に加え、反応場の相の状態や反応の進行の in-site 測定を行い、また (3) のプロセス最適化技術の知見に基づいて、粒子径分布を精密に制御しつつ、大量、高速に合成するプロセスを開発する。

#### (2) 高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス技術

表面修飾ナノ粒子等を高分子中に均一に分散させ、配向・配列を制御するプロセス技術を開発する。精密外場制御、基板相互作用制御等による高分子の相分離・配向構造の動的変化過程、さらにはその結果生じるナノ粒子等と高分子間の相互作用の制御を行うことで、高分子中のナノ粒子等の分散・配向・配列性制御基盤を構築するとともに高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセスを開発する。

#### (3) プロセス最適化技術

表面修飾ナノ粒子等の合成プロセス、高分子中のナノ粒子等の配向・配列プロセスを

in-siteに解析し、研究開発項目④の統合評価・支援技術と共同し、表面修飾ナノ粒子等の合成プロセス、均一分散・配向・配列プロセスを開発する。

- ・達成目標

[ 中間目標（平成21年度末） ]

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能の発現する材料を合成するプロセス技術を提供し、成果物を供試し、中間目標達成に寄与する。

[ 最終目標（平成23年度末） ]

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標に達成する相反機能の発現する材料を合成するプロセスを確立する。

研究開発項目④ 「材料設計に資する統合評価・支援技術開発」

- ・研究開発の必要性

相反機能発現から相反機能創成プロセスにわたっては、表面、界面をナノレベルで制御する必要があるが、表面、界面の構造・状態をナノレベルで解析するのは計測手段の原理の物理的限界を超える場合が多いため一般的には困難と考えられてきた。したがって、現状市販レベルの計測解析手法だけでは相反機能材料の設計に必要な情報が不足するのは明らかである。

近年、従来は不可能だった特異な現象のナノレベル計測や、ナノレベルあるいはそれ以下のサイズの状態を推定できる解析手法が開発され、これら技術を相反機能材料の解析評価に適応させることで、分子レベルでの解析手法が開発され、これら技術を相反機能材料の解析評価に適応させることで、分子レベルでの構造制御等の技術開発を効果的に推進することが可能になった。これらを積極的に応用し、相反機能材料の構造・状態に関する情報量を飛躍的に増加させることは材料開発にとって必要不可欠である。

また、相反機能材料設計を効率的に進めるには、前述の高度計測結果とともに、研究開発項目①における機能評価や研究開発項目②、③における現場モニタリング等の各階層における結果を情報科学的に収集、分類、統合し、機能発現に関わる経験則などを新しい知識体系として取り出し、材料設計にフィードバックするという一連の取り組みを材料に応じて柔軟に実施できることが不可欠である。

- ・研究開発内容

一企業または団体では開発や保有保持が困難な先端分析手法を活用し、市販の装置に頼るのみでは計測が困難である相反機能材料の局所構造及び状態を高度計測する。ナノレベル空間分解能を達成するためには、実際の計測手段だけでなく、計算機による画像復元技術も活用する。相反機能材料では原子・分子の配列や欠陥から界面・表面状態までの多階層のスケールでの現象が機能発現に密接に関係するため、測定対象とのインターフェイス部分を高度化・最適化するとともに現象のスケールに適合した手法を駆使し、多元的な情

報を収集する。多変量解析等の情報解析技術を着目する材料機能に絞って活用し、上記の計測解析結果、さらに研究開発項目①における機能評価や研究開発項目②、③における現場モニタリング等の各階層における情報を収集、分類、統合し、相反機能発現の鍵となる因子を探索する。成果を研究開発項目①～③の技術開発チームにフィードバックし、相反機能材料の設計に反映させる。

・達成目標

[ 最終目標 (平成23年度末) ]

相反機能材料の表面・界面、バルク・深さ方向の構造及び状態をナノレベルまでの分解能で複合的・多角的に解明できる計測手法を構築する。得られた計測結果に開発部材の機能評価、相反機能発現・相反機能材料創製過程における評価から得られる分解能、雰囲気などが異なる階層的なデータを統合、情報科学的に処理し、機能発現に関わる経験則などの新しい知識体系として取り出すための手法を開発する。得られた結果を超ハイブリッド材料の設計に反映させる。

## 2. 1. 2 全体スケジュールと予算

### (1) 全体スケジュール

表2. 1. 2-1 全体スケジュール

研究開発項目	H19	H20	H21	H22	H23
①超ハイブリッド材料技術 電気・電子材料 光学材料 工業材料	基本検討・原理試作・評価			実用化検討(助成事業:助成率1/2) 試作評価・実用化課題抽出	
②相反機能発現基盤技術 界面制御・ナノ空間制御 構造制御・最適化技術	発現手法検討・手法提供			ナノ空間・構造制御技術確立 発現機構解明	
③プロセス基盤技術 官能基導入ナノ粒子合成 均一分散・配列・配向 プロセス最適化	ナノ粒子流通式合成・技術・供試物提供 分散・配列・配向予備検討 流通式装置導入・検討			流通式大量合成 分散・配列・配向技術開発 スケールアップ・可視化技術 大量合成装置設計技術確立	
④統合評価・支援技術	概念設計 環境整備 課題抽出	データ収集・選定指針 統計処理アルゴリズム開発 高度化		統合プログラム 開発 系統的なデータ収集と解析	設計支援 データ解析

(2) 開発予算

表2. 1. 2-2 開発予算

H20:項目①②③  
加速97百万円

研究開発項目	H19	H20	H21	合計
①超ハイブリッド材料創製技術開発	353	222	136	711
②相反機能発現技術開発	159	109	68	336
③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発	155	208	230	593
④材料設計に資する統合評価・支援技術開発	133	81	66	280
合計	800	620	500	1920

H19:経産省直執行

単位百万円

2. 2 研究開発の実施体制

本プロジェクトの目的を達成するため、国立大学法人 東北大学 多元物質科学研究所 教授 阿尻雅文をプロジェクトリーダーとして、以下の実施体制とする。(図2. 2-1) (財)科学技術戦略推進機構(以下JCIIと略記する。)(独)産業技術総合研究所(以下産総研と略記する。)グループ(、三菱化学(株)グループ、東レ・ダウコーニング(株)グループの3グループで競争原理のもと研究開発を推進する。

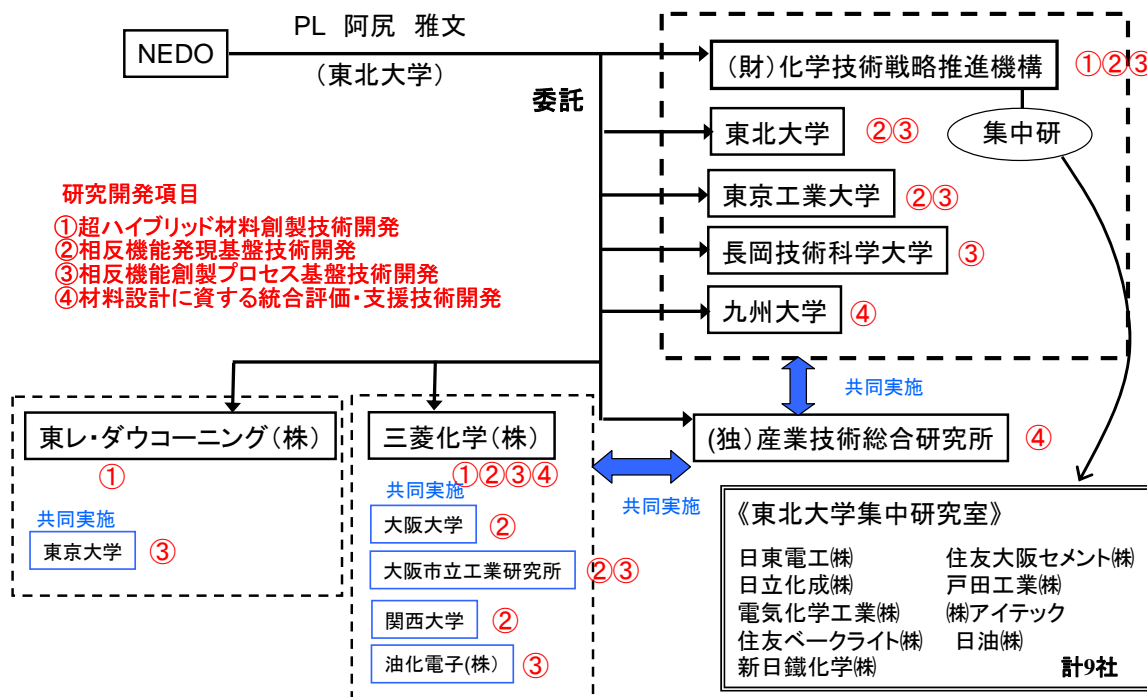


図2. 2-1 超ハイブリッド材料技術開発実施体制

また、研究開発項目についての視点からまとめた研究開発の体制を図2. 2-2に示す。  
 ①超ハイブリッド材料創製技術開発をおもに企業が、②相反機能発現基盤技術開発、③相反機能発現プロセス基盤技術開発については大学が、④材料設計に資する統合評価・支援技術開発は産総研が中心となり垂直・水平連携体制となっている。また、ユーザー企業とは定期的に情報交換を実施している。

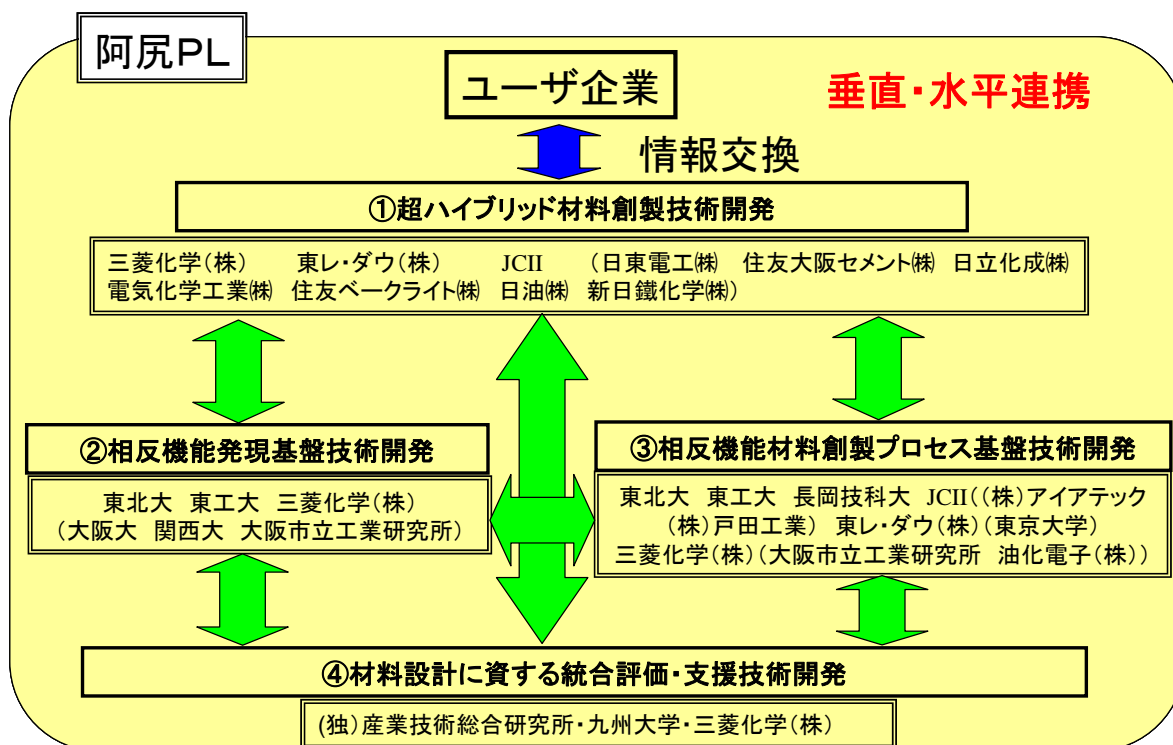


図2. 2-2 超ハイブリッド材料技術開発の研究開発項目と実施体制

以下に研究開発項目ごとの個々のテーマと担当を記載する。

### ①超ハイブリッド材料創製技術開発 10テーマ1法人9社

#### 〈電気・電子材料分野〉

- ・次世代型放熱シートの開発 【JCII(日東電工(株))】
- ・高熱伝導絶縁シート材料の開発 【JCII(日立化成工業(株))】
- ・熱伝導性に優れた新規窒化ホウ素材料の開発 【JCII(電気化学工業(株))】
- ・高熱伝導性接着剤及び封止材の開発 【JCII(住友ベークライト(株))】
- ・ポリシロキサン系放熱性超ハイブリッド材料技術開発 【東レ・ダウコーニング(株)】
- ・ポリシロキサン系耐熱性超ハイブリッド材料技術開発 【東レ・ダウコーニング(株)】

#### 〈その他工業材料分野〉

- ・超ハイブリッド材料創製技術開発 【三菱化学(株)】

#### 〈光学分野〉

- ・低屈折率及び高屈折率光学材料の開発 【JCII(日油(株))】
- ・高屈折光学材料の開発 【JCII(新日鐵化学(株))】
- ・高屈折率光学材料の開発 【JCII(住友大阪セメント(株))】

\* JCII: (財)化学技術戦略推進機構



## ②相反機能発現基盤技術開発 11テーマ4大学1法人1機関1社

### 〈有機・無機材料界面の制御技術〉

- ・超臨界法による粒子界面制御技術開発 【東北大学】
- ・分子レベルでの面特異吸着による界面制御技術開発 【東北大学】

### 〈ナノ空間制御技術開発〉

- ・低屈折率樹脂中での均一分散基礎技術開発 【東北大学】

### 〈ナノ構造制御技術〉

- ・ナノ粒子表面の有機修飾の基盤技術開発 【東北大学】
- ・前駆体法による無機ナノ粒子分散系薄膜材料の開発 【東京工業大学】

### 〈ナノ空間・構造制御手法最適化技術〉

- ・表面修飾ナノ粒子と媒体との相互作用の評価法開発 【東北大学】
- ・パターン基板と表面修飾モデル粒子との相互作用解析による分散因子検証 【東北大学】
- ・マイクロ相分離による材料開発及び*in-situ*光学測定法開発 【東京工業大学】

- ・絶縁性と高熱伝導性を有する無機フィラーの開発 【三菱化学(株)(大阪大学)】
- ・液晶性エポキシ樹脂の開発 【三菱化学(株)(関西大学)】
- ・無機ナノ粒子-樹脂ハイブリッド化技術開発 【三菱化学(株)(大阪市立工業研究所)】

## ③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

### 〈官能基導入ナノ粒子合成プロセス技術〉

- ・超臨界法によるナノ粒子合成基盤技術開発 【東北大学】
- ・液中レーザーを用いた高熱伝導性ナノシート形成及び有機無機ハイブリッド合成技術開発 【長岡技術科学大学】
- ・超臨界水熱合成装置の開発 【JCI(株式会社アイテック)】
- ・超臨界水反応による高速大量表面修飾プロセス開発 【JCI(株式会社戸田工業)】

### 〈高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス技術開発〉

- ・高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス基盤技術開発 【東北大学】
- ・延伸熱処理による無機ナノ粒子の配向・配列制御技術開発 【東京工業大学】

### 〈プロセス最適化技術〉

- ・プロセス最適化技術 【東北大学】
- ・ポリシロキサン系相反機能材料創製プロセス基盤技術開発 【東京大学】

- ・浸漬型ナノ被覆プロセス技術開発 【三菱化学(株)(大阪市立工業研究所)】
- ・ハイブリッド材料成型ナノプロセス技術開発 【三菱化学(株)(油化電子(株)、大阪市立工業研究所)】

## ④材料設計に資する統合評価・支援技術開発

### 2テーマ1大学1法人9社

- ・材料設計に資する統合評価・支援技術開発 【(独)産業技術総合研究所・九州大学】
- ・超ハイブリッド材料における熱物性計測法の開発 【三菱化学(株)・(独)産業技術総合研究所】

## 2. 3 研究の運営管理

研究開発全体の管理・執行に決定権を有するNEDOは、経済産業省及び研究開発責任者と密接な関係を維持しつつ、本プログラムの目的、及び目標に照らして適切な運営管理を実施した。また、必要に応じて、外部有識者の意見を運営管理に反映させた。

### ・プロジェクトリーダー

NEDOが実施・管理を行う当該プロジェクトの、より効率的な開発の推進を図るため、研究開発の現場において指示、指導、調整の任にあたり、研究開発計画原案の策定、研究成果のとりまとめ等の役割をプロジェクトリーダー（PL）として国立大学法人 東北大学 多元物質科学研究所 教授 阿尻雅文のもと、本プロジェクトを推進した。PLの役割を表2. 3-1に示す。

表2. 3-1 プロジェクトリーダー（PL）の役割

組織関係	<ul style="list-style-type: none"> <li>研究体の研究室の設置、廃止等の組織構成の決定</li> <li>研究体のサブ研究リーダーの選任と解任</li> </ul>
研究体所属研究者関係	<ul style="list-style-type: none"> <li>大学、産総研、企業が提出する研究者候補リストの中からの研究体所属研究者の選任</li> <li>研究体所属研究者の任期の設定および変更に関する調整</li> <li>研究体所属研究者の担当研究項目の決定</li> <li>その他研究体所属研究者の総合的な統括</li> </ul>
予算、研究場所、研究設備および装置等	<ul style="list-style-type: none"> <li>実施時における予算の配分の調整</li> <li>研究体の活動に割り当てられた研究場所の配分、模様替え等の調整</li> <li>研究設備および装置等の使用範囲等の調整</li> </ul>
研究計画および報告	<ul style="list-style-type: none"> <li>年度毎の概算要求案（年間研究計画書案、実施計画書案の策定）</li> <li>研究計画の変更（実施計画書変更申請案の策定）</li> <li>軽微な研究計画の変更（実施計画書変更届出書の策定）</li> <li>研究経過の報告（成果報告書案、その他必要に応じた研究報告書案の策定）</li> <li>研究終了報告（研究終了報告書案の策定）</li> </ul>
研究評価	<ul style="list-style-type: none"> <li>研究内容の研究体内での評価</li> <li>研究者の研究体内での評価</li> </ul>
研究成果	<ul style="list-style-type: none"> <li>別途定める研究体知的財産権取扱規程の施行およびその遵守に関する指導管理</li> <li>論文発表等による公開を、知的所有権による保護に優先させるか否かの判断</li> </ul>
第三者との共同研究、研究者等の招聘	<ul style="list-style-type: none"> <li>第三者との共同研究の実施と管理（①共同研究および共同研究契約に対する要望事項の取り纏め、②共同研究契約書案の策定、③各種報告書案の策定）</li> <li>外部研究者（産総研、大学、企業等）の調整および選任</li> </ul>
その他	<ul style="list-style-type: none"> <li>研究体の研究活動推進のための総合調整</li> <li>経済産業省、NEDO、大学、企業に置かれた各種関係会議への対応、総括</li> <li>ワークショップ、シンポジウム等、事業計画の策定および実施</li> </ul>

- ・技術推進委員会

技術推進委員会は平成20年度に開催され、その開催内容を下記に示した。

第一回技術推進委員会

- ・評価の実施時期

平成20年12月25日

- ・評価手法

外部有識者による評価

- ・評価事務局

NEDO ナノテクノロジー・材料技術開発部

- ・評価項目・基準

評価項目を以下に示す。

- 1) マイルストーンについて
- 2) 研究開発成果について
- 3) 実用化の見通し

表2. 3-2 第一回技術推進委員会外部有識者委員

	氏名（敬称略）	所属・役職
委員	西 敏夫	東北大学 教授
委員	菅原 義之	早稲田大学 教授
委員	住田 雅夫	東京工業大学 教授
委員	高原 淳	九州大学 教授

（敬称略・順不同）

- ・総合調査研究委員会、材料評価委員会

プロジェクトでの包括的な研究内容に関する討議とその進捗状況の把握、問題点の検討を目的に、J C I I が主催する総合調査研究委員会、評価分科会を下記に、また、総合調査研究委員会委員名簿を表1に示した。

総合調査研究委員会

○平成19年度

第一回 : 平成19年11月19日

研究内容の方向付けに関する討議と問題点等を検討。

第二回 : 平成19年3月12日

19年度の研究進捗状況と成果について把握すると共に、次年度（19年度）における研究実施計画等を検討。

○平成20年度

第三回 : 平成20年9月16日

包括的に研究内容の進捗状況を把握すると共に、研究内容の方向付けに関する討議と問題点等を検討

第四回 : 平成20年3月9日

20年度の研究進捗状況と成果について把握すると共に、次年度(21年度)における研究実施計画等を検討。

評価分科会

○平成19年度

第一回 : 平成19年12月11日

○平成20年度

第二回 : 平成20年6月9日

第三回 : 平成20年3月9日(総合調査委員会と同時開催)

表2.3-3 総合調査研究委員会 委員名簿

(平成21年3月9日現在)

委員	氏名	所属・役職名 等
委員	岡本 佳男	名古屋大学 エコトピア研究所 名誉教授
委員	木村 恒久	京都大学 大学院農学研究科 教授
委員	山田 真司	(株)日立製作所材料研究所 電子材料研究部 部長
委員	横川 弘	パナソニック 電工 材料技術開発部 光機能材料開発G 部長
委員	岡本 徹志	株式会社東芝 電力システム社 電力・社会システム技術開発センター 主査
委員	橋本 富仁	日産自動車 材料技術部 パワートレイン材料グループ 主担
委員	杉浦 昭夫	株式会社デンソー 材料技術部 機能複合材料室 主幹

・グループの打ち合わせへの参加

阿尻PLとNEDOとで各グループの定期打ち合わせに参加し、進捗状況のフォロー及び、方針指導及び技術指導を行った。

J C I I ・産総研G開発検討会(1回/月)

三菱化学G全体会議(4回/年)及び定例会議(1回/月)

東レ・ダウ定例会議(2回/月)及び東レ・ダウ-東大定例会議(2回/年)

・阿尻PLの個別指導等

阿尻PLとNEDOで以下の技術指導、情報交換を行った。

三菱化学Gへの研究方針指導、加工性(相反機能)発現の共通基盤情報交換(6回)

東レ・ダウGへの共通基盤としての超臨界技術の指導（3回）

図2. 3-1に運営管理の実績を示す。

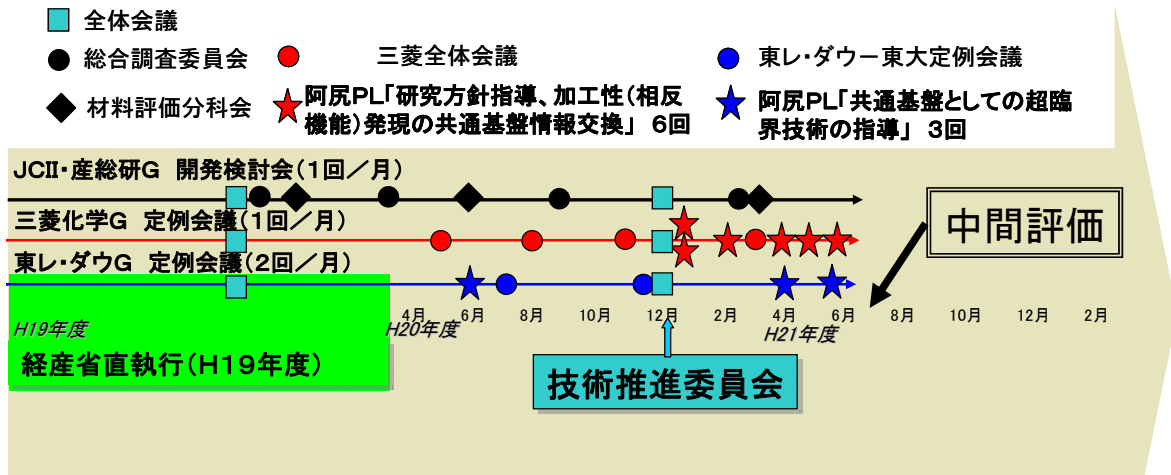


図2. 3-1 プロジェクトの運営管理

### 3. 情勢変化への対応

#### ○加速予算

プロジェクトの運営管理として、進捗状況や技術推進委員会の結果をふまえ、目覚ましい技術的成果を上げ、年度内に更なる追加配分を行い、加速的に研究を進捗させることにより、当該技術分野における国際競争上の優位性が確立できることが期待されるテーマに関して、研究加速財源の配分を行った。具体的には、ハイブリッド材料創成技術の開発において、(1) ナノ粒子合成機構の解明、(2) 無機ナノ粒子のポリマー中への均一分散、(3) ナノ粒子の配向・配列制御に関する研究開発を加速して実施するために、下記の加速予算を投入して研究開発の促進を行った。

#### 研究加速財源の配分の実績

平成20年度

開発項目	加速案件	金額
①②	表面修飾ナノ粒子複合解析機・分光装置	45百万円
①③	分散装置（小型混練・成型機）	18百万円
①③	多機能薄膜材料評価 X線回折装置	34百万円

#### ○体制の変更

プロジェクトの実施体制として、(財)化学技術戦略推進機構からの再委託先であった東北大学、東京工業大学、長岡技術科学大学、九州大学の4大学をプロジェクトリーダーの指導力を迅速に反映することを目的として、NEDOとの直接委託契約に変更した。(平成21年3月31日付け)

#### **4. 中間評価への対応**

中間評価を平成21年度に実施する。

#### **5. 評価に関する事項**

NEDOは、国の定める技術評価に係わる指針及びNEDOが定める技術評価実施要領に基づき、技術及び実用化の観点から、研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義並びに将来の産業への波及効果などについて、外部有識者による研究開発の中間評価を平成21年度、事後評価を平成24年度に実施する。なお、評価の時期については、当該研究開発に係る技術動向、政策動向、当該研究開発の進捗状況等に応じて、適宜見直すこととする。

### Ⅲ. 研究開発成果について

全体の成果を研究開発3グループごと、表にまとめて以下に示す。

#### 1. 1 (財)化学技術戦略機構・(独)産業技術総合研究所

(財) 化学技術戦略推進機構  
 東北大学 東京工業大学  
 長岡技術科学大学 九州大学  
 (独) 産業技術総合研究所

#### 研究開発項目① 超ハイブリッド材料創製技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
(I)電気・電子材料分野 [1]パワーデバイス周辺材料 (1)熱伝導率 中間目標値 30W/mK  最終目標値 40W/mK	超臨界法による、粒子表面改質で高充填化、および相分離構造等による熱伝導パスの形成で、35W/mKを得た。  更なる高熱伝導性フィラーの適用や高充填化、構造制御による熱伝導パス形成を進める。	達成
(2)耐熱性 中間目標値 300℃  最終目標値 400℃	現有樹脂にて達成。  耐熱性ポリマーを探索・適応予定。	達成
(3)絶縁破壊電圧 中間目標値 30kV/mm  最終目標値 50kV/mm	現状 25kV/mmを得た、プロセス改良により更に向上予定。  樹脂とフィラー間の特性差を極小にする表面改質技術とプロセス改良により向上させる。	達成見込み 2010・3
(4)成形性 易成形性	表面改質フィラーにより、高充填でも粘度の上昇を押さえ流動性を確保できた。	達成
[2]ICパッケージ周辺材料 封止材 (1)熱伝導率 中間目標値 7W/mK  最終目標値 15W/mK	現在 6W/mKを達成。表面修飾フィラーによる粘度低減効果で、高充填化ができ熱伝導率向上可能。  高熱伝導フィラーの採用と、表面改質による界面抵抗低下で更に熱伝導率を向上させる。	達成見込み 2009・12
(2)密着強度 中間目標値 1Mpa 最終目標値 1Mpa	260℃の条件にて、6Mpaを達成。 熱伝導率向上とのトレードオフ解消技術を開発継続する。	達成
(3)体積抵抗率中間目標値 $10^{11} \Omega \text{ cm}$ 最終目標値 $10^{11} \Omega \text{ cm}$	$10^{14} \Omega \text{ cm}$ を達成した。 他の高熱伝導フィラー併用時の低下抑制技術を開発する。	達成
ICパッケージ周辺材料 接着剤 (1)熱伝導率 中間目標値 40W/mK  最終目標値 60W/mK	38W/mKを得ている。若干の高充填化により達成可能。 表面修飾フィラーの配合率、プロセス最適化により	達成見込み 2009・10

<p>(2)密着強度 中間目標値 1Mpa 最終目標値 1Mpa</p>	<p>達成予定。</p> <p>260°C4Mpaを達成。 フィラーの高充填化による低下を防止技術を開発。</p>	<p>達成</p>
<p>(Ⅱ)光学材料分野</p>		
<p>[1]低屈折率光学材料</p>		
<p>(1)屈折率 中間目標値 1.42 以下 最終目標値 1.40 以下</p>	<p>ノニオン界面活性剤と中空シリカ等の適応で 1.38～1.40 の低屈折率材料を得た。</p>	<p>達成</p>
<p>(2)鉛筆硬度 中間目標値 3H 以上 最終目標値 4H 以上</p>	<p>硬膜設計により3Hを達成。 膜物性強化のための最適化を進める。</p>	<p>達成</p>
<p>(3)成形加工性(MFR JIS k7210) 中間目標 10g/10min 最終目標 30g/10 min</p>	<p>30g/min 以上の流動性確保。</p>	<p>達成</p>
<p>[2]高屈折率光学材料</p>		
<p>(1)屈折率 中間目標値 1.6 以上 最終目標値 1.7 以上</p>	<p>高屈折率ナノ粒子の表面改質により、樹脂中への完全分散が可能となり 1.78 の光学材料を開発した。</p>	<p>達成</p>
<p>(2)光線透過率 中間目標値 90%以上 最終目標値 90%以上</p>	<p>同上理由により光線透過率 90 以上を達成。</p>	<p>達成</p>
<p>(3)成形加工性 MFR10g/10min 以上 MFR30g/10min 以上</p>	<p>ナノ粒子表面改質技術により、樹脂中への高充填化が粘度の上昇を抑えてたっせいでき、30g/10min 以上の流動性確保できた。</p>	<p>達成</p>
<p>知的財産権の取得</p>	<p>粒子表面改質、 材料開発関連 7件</p>	
<p>成果の普及</p>	<p>材料開発関連 論文および国際学会発表 29 件 国内学会発表 9 件 新聞発表 0 件 国際学会招待講演 0 件 (国内) 展示会 13 件</p>	



研究開発項目② 相反機能発現のための基盤技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p>(1)有機・無機材料の界面制御</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・超臨界法による粒子界面制御 (東北大) 有機修飾量の定量化、修飾機構の解明、修飾条件の最適化を開発し、超臨界法での界面制御基盤技術を構築する。</li> <li>・分子レベルでの面特異吸着による界面制御 (東北大) 高熱伝導粒子である h-BN粒子の合成と表面修飾、形態制御。</li> </ul> <p>(2)ナノ空間制御</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・低屈折率樹脂中の均一分散 (東北大) 単分散シリカナノ粒子の合成と形態制御</li> </ul> <p>(3)ナノ構造制御</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ナノ粒子表面の有機修飾 (東北大) メカニカル分散による表面修飾法開発 2 段重合法への適応性向上</li> <li>・前駆体法による金属/無機ナノ粒子分散薄膜材料開発 (東工大) ビルドアップ法による金属ナノ粒子の樹脂薄膜中への均一分散と 2 重パーコレーション構造の最適化</li> </ul> <p>(4)ナノ空間・構造制御手法最適化技術</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・表面修飾ナノ粒子と媒体との相互作用評価 (東北大) 表面修飾ナノ粒子の分散性の定量的評価と相図の作成</li> <li>・パターン基板と表面修飾モデル粒子との相互作用解析による分散因子検証 (東北大) 高分子マトリックス中における分散状態の支配因子の解明</li> <li>・マイクロ相分離による材料開発及び In-situ 光学測定法 (東工大) マイクロ相分離構造の生成条件の探索と制御 高分子複合系における配向構造制御基盤技術確立</li> </ul> <p>知的財産権の取得</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・In-situ 表面修飾の機構解明と最適条件の探索を行った。表面ゼータ電位をコントロールすることが重要であること確認。表面修飾チタニア粒子、表面修飾シリカ粒子の形成に成功し、高屈折率光学材料へ提供した。超臨界場での解離平衡・等電点評価や速度論的解明を計算機科学手法により進める。</li> <li>・高度水熱合成技術により、h-BN粒子の合成と表面修飾に成功し、高熱伝導材料開発へ提供した。形態制御技術へと開発により面等特異性を向上させる。</li> <li>・構造指向材を用い、水熱合成反応で単分散シリカナノ粒子合成に成功した。低屈折樹脂中での分散制御性を向上させる表面改質技術へ繋げる。</li> <li>・会合チタニアナノ粒子を少量の表面改質剤で高濃度、透明な分散液として得ることに成功。高屈折光学材料開発へ提供した。</li> <li>・金属ナノ粒子との親和性を制御したポリイミド前駆体構造の設計合成を行った。マイクロ相分離した高分子薄膜中の親和性部位に金属銀ナノ粒子の偏析に成功した。マイクロ相分離構造については熱伝導パス形成にも有効な技術手段として提供。</li> <li>・ナノ粒子系熱力学(相平衡・相分離構造)の確立を目指し開発を進めた。表面改質粒子の有機溶剤中の分散安定化について、溶解度パラメータを用いた傾向を把握した。</li> <li>・親水・疎水パターン基板の設計作成完了。モデル粒子の特性解析を行った。</li> <li>・2 種のポリイミドを用いたマイクロ相分離構造形成に成功した。また In-situ 観察としての光学計測定法を確立した。延伸速度等の条件にて、構造の制御が可能となってきた。 熱伝導材料特に熱伝導パス形成への基盤技術として提供する。</li> </ul> <p>前駆体法による光学材料関連 2 件 出願</p>	<p>達成 計算科学による機構解明、速度論</p> <p>達成 形態制御による面特異性の確保</p> <p>達成 樹脂中の分散性</p> <p>達成 高屈折率材料への適応</p> <p>達成 ポリイミドマイクロ相分離構造の高熱伝導材料への展開</p> <p>達成 計算機科学の採用による高度化</p> <p>達成 支配因子の物理化学的考察</p> <p>達成 マイクロ相分離生成条件の更なる制御</p>

成果の普及	論文および国際学会発表 69 件 国内学会発表 38 件 新聞発表 2 件 国際学会招待講演 28 件 (国内) (8 件) 展示会 7 件	
-------	---	--

研究開発項目③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p>(1)官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術</p> <p>i)粒子等表面に有機官能基を大量、高速に導入する技術</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・超臨界法を用いた表面修飾粒子の効率的な形成プロセスの構築。</li> </ul> <p>ii)有機官能基を導入したナノ粒子等のin-situ 合成技術</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・高速大量に形成した表面修飾粒子の材料創製技術への提供。</li> </ul> <p>iii)有機修飾ナノ粒子等の大量、高速、精密合成技術</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・実用化に向けたスケールアップ</li> <li>・10t/年能力の構築</li> <li>・安定性、再現性、生産性を満足したトータルシステムとしての構築。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・超臨界法によるナノ粒子合成基盤技術開発 (東北大) 流通式装置を開発すると共に、合成時の課題を装置開発へフィードバックを行った。</li> <li>・超臨界水熱合成装置の開発 (化学技術戦略推進機構) 流通式装置のスケールアップに関連する必要な装置を開発実行し、中量規模の装置を完成させた。</li> <li>・超臨界水反応による高速大量表面修飾プロセス開発 (化学技術戦略推進機構) 表面修飾シリコニア粒子、チタニア粒子を形成し、光学材料開発へ提供した。BN 粒子の表面改質も進めた。</li> <li>・高分子中ナノ粒子等分散・配向・配列プロセス基盤技術開発(東北大)</li> </ul>	<p>達成</p> <p>0.1t/年能力装置完成</p> <p>1t/年能力装置システム化 H21 完成</p> <p>実用化対応 H22 実施予定</p>
<p>(2)高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス技術開発</p> <p>材料機能を向上させるために、樹脂中のフィラーを1次粒子レベルまで分散させ、液晶等の使用も考慮しながら光、磁場、電場、応力等の外力により樹脂中のフィラーを配向・配列させるプロセスを開発する。</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>光、電場、磁場を用いた高分子中ナノ粒子の分散状態の制御を可能とする技術開発。液晶付与したチタニア粒子での磁場配向に成功。</li> <li>・液中レーザーを用いた銀ナノシート形成技術開発 (長岡岐大) 液中レーザー法によって厚み 30nm のナノシートの合成に成功した。開発したナノ秒パルス電源を用いBN ナノシートの配向制御を可能とした。</li> <li>・延伸熱処理による無機ナノ粒子の配向・配列制御技術開発 (東工大) 相分離挙動を示す高分子を用い銀ナノ粒子の偏析構造の形成に成功した。</li> <li>・プロセス最適化技術開発 (東北大) スケールアップ時の諸問題を解決する In-situ 観察として高速 VTR を用い可視化に成功した。</li> </ul>	<p>達成</p> <p>プロセス基盤技術構築 世界初の樹脂中のフィラー配向配列プロセス開発を行う</p>

(3)プロセス最適化技術	<p>流れの可視化結果を踏まえた粒子形成シミュレーション技術により、超臨界装置混合部での渦の発生が認められ、粗大粒子や閉塞の原因となること判明した。</p> <p>プロセス関連      4件 出願</p>	
知的財産権の取得	<p>論文及び国際学会発表      66件</p> <p>国際学会招待講演      22件</p> <p>（国内）      （8件）</p>	
成果の普及	<p>国内学会発表      31件</p> <p>展示会 発表      8件</p> <p>新聞発表      6件</p>	

研究開発項目④ 材料設計に資する統合評価・支援技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p>○材料構造の計測・解析</p> <p>H23年度末の最終目標： 相反機能材料の表面・界面、バルク・深さ方向の構造及び状態をナノレベルまでの分解能で複合的・多元的に解明できる計測手法を構築する。 計測制御により得られた結果を超ハイブリッド材料の設計に反映させる。</p>	<p>電気・電子材料分野</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・TEMにより粒子表面が設計通り修飾されていることを確認。</li> <li>・未修飾粒子ではナノ空孔が深くまで発生しており、界面熱抵抗悪化の原因となることを指摘。</li> </ul> <p>光学材料分野</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・TEM、固体 NMRにより粒子表面修飾、結合状態、粒子分散状態への影響を確認。粒子修飾の指針となるデータを提供。</li> <li>・ナノ空孔と屈折率に相関。ナノ空孔の低減が屈折率低減の鍵となることを指摘。</li> <li>・他の手段では見えないナノ粒子の分散ゆらぎを確認。光線透過率低下を引き起こすことを指摘。</li> </ul> <p>技術動向調査</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 特許情報を収集、解析し、プロジェクト内に提供。</li> </ul>	<p>達成</p> <p>高熱伝導材料に対する本格的な取り組み (H22年度)</p> <p>達成</p> <p>開発が先行している光学材料の計測と解析 (H21年度)</p> <p>達成</p> <p>技術動向調査を継続しプロジェクトの運営に寄与する</p>
<p>○計測データの統合解析 (材料機能インフォマティクス)</p> <p>H23年度末の最終目標： 本開発項目で得られた計測結果に開発部材の機能評価、相反機能発現・相反機能材料創製過程における評価から得られる分解能、雰囲気などが異なる階層的なデータを統合、情報科学的に処理し、機能発現に関わる経験則などの新しい知識体系として取り出すための手法を開発する。</p>	<p>解析技術環境整備</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・異種データを統合的に取り扱うための情報処理環境を整理。</li> <li>・多階層データ収集の選定指針とその統計処理アルゴリズムの開発</li> <li>・データの質を高めるための超解像手法やゆらぎのマイクロ、マイクロデータを統合解析する空間統計学(ハリオグラム)を材料構造ゆらぎに初めて適応。</li> </ul>	<p>達成見込み</p> <p>H22年度9月末</p> <p>統合解析手法の整備の加速、統計的なデータ収集・解析を開始</p>

	材料機能インフォマックス関連 5件 出願  論文及び国際学会発表 1件 国際学会招待講演 0件 (国内) (0件) 国内学会発表 14件 展示会 発表 0件 新聞発表 0件	
--	---	--

## 1.2 三菱化学(株)

### 研究開発項目① 超ハイブリッド材料創製技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p>(中間目標)</p> <p>(1)機能合目的的達成手法の提案 以降の部材について、下記の間 間目標値を達成する一手法以上を 提案すること。ただし単に目標値を 達成するのではなく、相反機能を合 目的的に実現する手法であること。 [Ⅲ]その他工業材料分野 [1]放熱性材料(液晶画面用 LED 放熱用、燃料電池車・ロボット駆 動部放熱用) 熱伝導率<math>\geq 20\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}</math> 成形粘度<math>\leq 1000\text{Pa}\cdot\text{s}</math> 耐衝撃性<math>\geq 15\text{J}/\text{m}</math> 比重<math>\leq 3.5</math> 体積抵抗率<math>\geq 10^{12}\Omega\cdot\text{cm}</math></p> <p>(2)市場評価可能とする成果物の供 試 (1)の目標達成を客観的に判断 できるように、市場評価が可能な条 件(形態・数量)を明らかにし、成果 物を供試する。市場の評価を受け て、実用化するための課題を客観的 に抽出する。</p> <p>(最終目標) (1)機能合目的的達成手法の提案 以降の部材について、下記の最</p>	<p>(1) 高充填－高熱伝導コンセプトに基づき、中間目標を達 成した。 〔低粘度〕 熱伝導率<math>=24\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}</math> 粘度<math>=170\text{Pa}\cdot\text{s}</math> 比重<math>=1.8</math> 衝撃強度<math>=22\text{J}/\text{m}</math> 電気抵抗<math>=10^{14}\Omega\cdot\text{cm}</math> 〔高熱伝導〕 熱伝導率<math>=41\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}</math> 粘度<math>=450\text{Pa}\cdot\text{s}</math> 比重<math>=1.9</math> 衝撃強度<math>=33\text{J}/\text{m}</math> 電気抵抗<math>=10^{14}\Omega\cdot\text{cm}</math></p> <p>(2) 家電メーカーA社に <math>30\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}</math> のサンプルを持ち込み協 議した。コスト重視でない、全く新しい製品への搭載を継 続して議論することを確認した。 家電メーカーB社より熱伝導シート材の照会があり、 三菱化学グループ会社にて試作を検討することになっ た。 顧客情報より、熱伝導部材は必ずしも厚さ方向のみ の熱伝導性だけでないことが分かった。</p> <p>以下( )は予定を含む件数 特許出願 0(1) 展示会 0(2) 新聞・雑誌 0 論文 0 口頭発表 0 受賞 0</p> <p>(最終目標に対する見通し) 高充填－高熱伝導コンセプトの解析とともに、各種基 盤技術を適用することにより、最終目標値の達成が見</p>	<p>(1) 達成</p> <p>(2) 達成</p>

<p>終目標値を達成する一手法以上を提案すること。ただし単に目標値を達成するのではなく、相反機能を合目的的に実現する手法であること。</p> <p>[Ⅲ]その他工業材料分野 [1]放熱性材料(液晶画面用LED放熱用、燃料電池車・ロボット駆動部放熱用)</p> <p>熱伝導率<math>\geq 40\text{W/m}\cdot\text{K}</math>  成形粘度<math>\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}</math>  耐衝撃性<math>\geq 24\text{J/m}</math>  比重<math>\leq 2.5</math>  体積抵抗率<math>\geq 10^{12}\Omega\cdot\text{cm}</math></p> <p>(2)市場評価可能とする成果物の供試</p> <p>(1)の目標達成を客観的に判断できるように、市場評価が可能な条件(形態・数量)を明らかにし、成果物を供試する。市場の評価を受けて、実用化するための課題を客観的に抽出する。</p>	<p>込まれる。</p>	
---	--------------	--

研究開発項目② 相反機能発現のための基盤技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p>(中間目標) 研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能の発現手法を提供し、中間目標達成に寄与する。</p> <p>自主目標: 〔②-1 絶縁性と高熱伝導性を有する無機材料の開発〕 a) BNナノ粒子、BNナノシートの合成条件確立。 b) 表面修飾可能な非酸化物無機ナノ材料を開発。 c) 電気絶縁表面被覆法の開発。</p> <p>〔②-2 液晶性エポキシ樹脂の開発〕 a) 高熱伝導で力学延伸や磁場配向に適した液晶性エポキシ樹脂の開発・合成を行う。</p> <p>〔②-3 無機材料の表面修飾技術開発〕 a) 無機ナノ粒子表面への官能基導入手法確立。</p> <p>(最終目標) 研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標を達成する相反機能の発現機構を明らかにし、それに基づき相反機能発現材料のナノ空間・構造制御手法を確立する。</p>	<p>〔②-1 絶縁性と高熱伝導性を有する無機材料の開発〕 a) 高結晶高純度 BN ナノシートの合成に成功。 b) Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ナノワイヤー合成に成功。 c) Ag ナノロッド、Au ナノシートの合成に成功。Ag ナノロッドの Ti(iOPr)<sub>4</sub> 絶縁被覆に成功。</p> <p>〔②-2 液晶性エポキシ樹脂の開発〕 ・ドメイン高配向が可能な主鎖にターフェニル骨格を有する液晶エポキシの合成に成功。 ・高配向と易成形性が期待されるターフェニル型ツインメソゲンエポキシの合成にも着手、高重合度のエポキシモノマー含有で液晶性発現を見出す。</p> <p>〔②-3 無機材料の表面修飾技術開発〕 ・BN 粒子表面へのエポキシ基含有鎖の導入条件確立。 ・BN 粒子表面修飾により粘度低下、力学強度(引張剪断強度)向上、熱伝導率向上を確認。</p> <p>以下( )は予定を含む件数 特許出願 0(2) 展示会 0 新聞・雑誌 0 論文 1(5) 口頭発表 11(18) 受賞 0</p> <p>(最終目標に対する見通し) 最終目標の高熱伝導材料を達成するための構成要素としての基盤技術として応用しうる。</p>	<p>達成見込み(平成 21年 3月)</p> <p>達成</p> <p>達成</p>

研究開発項目③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p>(中間目標)</p> <p>研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の達成目標に掲げる相反機能を発現する材料を合成するプロセス技術を提供し、成果物を供試し、中間目標達成に寄与する。以下に自主目標を示す。</p> <p>自主目標:</p> <p>〔③-1 浸漬型ナノ被覆プロセス技術開発〕</p> <p>a) 液晶性エポキシ延伸紡糸の基礎検討と技術の見極め。</p> <p>b) 塗布性や接着性の確認および熱伝導率の見極め。</p> <p>〔③-2 ハイブリッド材料成型ナノプロセス技術開発〕</p> <p>a) ハニカム構造による熱伝導性改善効果を確認する。</p> <p>b) 市販材料を用い、成型プロセス側から高熱伝導性の検討を行う。</p> <p>c) 磁場発生装置を用い液晶エポキシ樹脂の基礎検討を行う。</p> <p>(最終目標)</p> <p>研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」の最終目標を達成する相反機能を発現する材料を合成するプロセス技術を確立する。</p>	<p>〔③-1 浸漬型ナノ被覆プロセス技術開発〕</p> <p>a) 長さ 378mのヒーターが必要(現実的に不可能)であること判明。</p> <p>b) 熱伝導率の目標値 100W/mK に対して 20W/mK 程度の結果となった。</p> <p>〔③-2 ハイブリッド材料成型ナノプロセス技術開発〕</p> <p>a) 表面修飾 BN 粒子被覆フェノール樹脂粒子のハニカム構造で熱伝導率2倍(35vol%時)。</p> <p>b) 櫛型構造成型体で熱伝導制御の可能性を見出した。</p> <p>c) 液晶エポキシ樹脂の熱特性を磁場配向により評価し、約2倍の高熱伝導率化を達成。</p> <p>以下( )は予定を含む件数</p> <p>特許出願 0(1)</p> <p>展示会 0</p> <p>新聞・雑誌 0</p> <p>論文 0</p> <p>口頭発表 1(3)</p> <p>受賞 0</p> <p>(最終目標に対する見通し)</p> <p>中間目標を達成した系の加工プロセスにおけるフィラ一挙動を解析し、その相反機能達成原理をさらに広く適用して、最終目標値達成を狙える。</p>	<p>平成20年度末で事業中止。</p> <p>(理由)技術的難易度が非常に高いことを確認したため。</p> <p>達成</p>

研究開発項目④ 材料設計に資する統合評価・支援技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p>研究開発項目④「材料設計に資する統合評価・支援技術開発」</p> <p>(中間目標) 中間目標は設定せず。自主目標として設定。</p> <p>自主目標: 〔④-1 超ハイブリッド材料における熱物性計測法の開発〕 a) 高熱伝導性ナノ粒子の薄膜、粒子-樹脂複合構造の熱物性評価手法を整備。 b) 熱物性データを材料開発へとフィードバック。</p> <p>〔④-2 材料設計に資する統合評価・支援技術開発〕 a) 項目②、③の微視的計測を中心にして、計測値を収集、解析、統合処理し体系化を行う。 b) 巨視的評価手法の検討を行う。</p> <p>(最終目標) 相反機能の表面・界面、バルク・深さ方向の構造及び状態をナノレベルまでの分解能で複合的・多元的に解明できる計測手法を構築する。得られた計測結果に開発部材の機能評価、相反機能発現・相反機能材料創製過程における評価から得られる分解能、雰囲気などが異なる階層的なデータを統合、情報科学的に処理し、機能発現に関わる経験則などの新しい知識体系として取り出すための手法を開発する。得られた結果を超ハイブリッド材料の設計に反映させる。</p>	<p>〔④-1 超ハイブリッド材料における熱物性計測法の開発〕 a) 熱物性分布計測技術の高度化を前倒して着手した。 b) 周期スポット加熱放射测温法によりナノ粒子薄膜試料、ナノ粒子/樹脂繊維複合材料の熱物性評価を実施した。</p> <p>〔④-2 材料設計に資する統合評価・支援技術開発〕 a) 産総研熱物性データベースを統合処理、体系化のフレームワークとして試行導入し熱物性データなどを蓄積した。微視的解析では分子レベルでの考察を行い、理論限界を解析した。 b) 熱物性測定実データから、巨視的評価解析を試行し、高次のゆらぎ特性に系を特徴づける情報が含まれる可能性を見出した。</p> <p>以下( )は予定を含む件数 特許出願 0 展示会 0 新聞・雑誌 0 論文 0 口頭発表 0 受賞 0</p> <p>(最終目標に対する見通し) DB を活用した知識の体系化とともに超ハイブリッド材料の構造評価軸を材料開発へのフィードバックを見込める。</p>	<p>達成</p> <p>達成</p>



### 1.3 東レ・ダウコーニング(株)

#### 研究開発項目①

#### 超ハイブリッド材料創製技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p><b>(1)高放熱性材料技術開発</b></p> <p><u>中間目標</u></p> <p>1)熱抵抗値<math>\leq 0.03^{\circ}\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}</math></p> <p>2)硬化前粘度<math>\leq 200\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p> <p><u>最終目標</u></p> <p>1)熱抵抗値<math>\leq 0.01^{\circ}\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}</math></p> <p>2)硬化前粘度<math>\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p> <p><b>(2)高耐熱性材料技術開発</b></p> <p><u>中間目標</u></p> <p>1)貯蔵弾性率の低下率<math>\leq 10\%</math></p> <p>2)熱膨張係数<math>\leq 2.0 \times 10^{-5} \text{K}^{-1}</math></p> <p>3)硬化前粘度<math>\leq 200\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p> <p><u>最終目標</u></p> <p>1)貯蔵弾性率の低下率<math>\leq 10\%</math></p> <p>2)熱膨張係数<math>\leq 1.5 \times 10^{-5} \text{K}^{-1}</math>、</p> <p>3)硬化前粘度<math>\leq 100\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p>	<p>1) <math>0.79^{\circ}\text{C}\cdot\text{cm}^2/\text{W}</math></p> <p>2) <math>800\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p> <p>1) 76%</p> <p>2) <math>5.0 \times 10^{-5} \text{K}^{-1}</math></p> <p>3) <math>41\text{Pa}\cdot\text{s}</math></p> <p>粘度の値を多少犠牲にし、ポリシロキサン成分の架橋密度を増加させることにより熱膨張係数、弾性率低下率を大きく低下させることは可能</p>	<p>1) 未達</p> <p>2) 未達</p> <p>(東京大学での基盤技術の結果を反映して材料化開始予定)</p> <p>1) 達成見込み (2010年3月)</p> <p>2) 達成見込み (2010年3月)</p> <p>3) 達成</p>
<p><u>(3)成果物の供試</u></p>	<p>(3) 供試した</p>	<p>(3) 達成</p>

#### 研究開発項目③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

目 標	研究開発成果	達成度
<p><b>(1)官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術</b></p> <p><b>(1)シリカ系ハイブリッド</b></p> <p>1)ハイブリッド微粒子構造に対する合成条件依存性</p> <p>2)粒子構造が材料物性に与える影響</p> <p><b>(2)金属系ハイブリッド</b></p> <p>1)表面修飾剤、金属種の影響</p> <p>2)合成手法が表面修飾、粒子径、金属酸化状態に及ぼす影響</p> <p>3)流通式装置によるプロセス提案</p>	<p>1)表面修飾率が制御されたポリシロキサン修飾ナノ粒子の合成に成功</p> <p>2)シリカナノ粒子を硬質ポリシロキサンに良分散させる技術提案</p> <p>1)エポキシシロキサンの高い表面修飾効果を確認</p> <p>2)二段階加熱反応による表面修飾、酸化状態の制御を確認</p> <p>3)流通式装置による製造のための要素技術を確立</p> <p>急速昇温を行う混合手法の最適化が、高温高圧水を用いた微粒子合成に広く重要であり、流体シミュレーションと組み合わせることにより、混合状態と粒子生成反応の関係性を明らかにし、一般的な設計指針を得る。</p>	<p>1) 達成</p> <p>2) 達成</p> <p>1) 達成</p> <p>2) 達成</p> <p>3) 達成見込み (2010年3月)</p>

	出願特許: 2件(いずれも東レ・ダウコーニングと東京大 学との共同出願) 論文発表: 1件(共著) 学会発表: 5件(国際会議1件含む; 共著)	
--	---	--

## 2. 研究開発項目毎の成果

(財)化学技術戦略推進機構 東北大学 東京工業大学  
長岡技術科学大学 九州大学 (独)産業技術総合研究所

### 2.1 概要

#### 2.1.1 事業の目的

1. 単なるハイブリッド化ではなく、従来材料では成しえなかったトレードオフ（相反機能）をナノレベルでの界面・分散・構造制御で解消し、相反機能を合目的的に制御・実現することができる技術、あるいはそれに資する技術を産学官の科学的知見を結集して相反機能発現技術や相反機能創製プロセス技術などの共通基盤技術を開発する。

2. それら開発された技術を用いて、電気・電子材料部材（パワーデバイス、ICパッケージ）、光学部材（高屈折率材料、低屈折率材料）を開発する。

#### 2.1.2 開発する相反機能

開発する相反機能とは、既存材料では同時に発現させるのが困難で、材料特性上その機能が相反する複合機能を指す。すなわち、電気・電子材料（パワーデバイス、ICパッケージ）では、熱伝導性 $\leftrightarrow$ 絶縁性・耐熱性・接着性 $\leftrightarrow$ 易成型性を、光学材料（屈折率材料）では、屈折率 $\leftrightarrow$ 透明性 $\leftrightarrow$ 加工性の関係を指す。

この課題の克服には、従来のハイブリッド材料開発の課題であった、加工性・成型性（工業化）も含めたブレイクスルーが必要となる。

#### 2.1.3 電気・電子材料 中間目標

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」

①-A：電気・電子材料（パワーデバイス周辺材料）

絶縁破壊電圧 $\geq 30\text{kV/mm}$  $\leftrightarrow$ 熱伝導率 $\geq 30\text{W/mK}$  $\leftrightarrow$ 耐熱性 $\geq 300^\circ\text{C}$  $\leftrightarrow$ 易成型性

①-B：電気・電子材料（ICパッケージ周辺材料）

非絶縁：熱伝導率 $\geq 40\text{W/mK}$  $\leftrightarrow$ 接着強度（熱サイクル 1000 回後 $\geq 1\text{MPa}$  (at $260^\circ\text{C}$ )

絶縁：熱伝導率 $\geq 7\text{W/mK}$  $\leftrightarrow$ 体積抵抗率 $\geq 10^{11}\Omega\cdot\text{cm}$  (at $150^\circ\text{C}$ ) $\leftrightarrow$ 接着強度（熱サイクル 1000 回後） $\geq 1\text{MPa}$  (at $260^\circ\text{C}$ )

パワーデバイス（放熱シート）

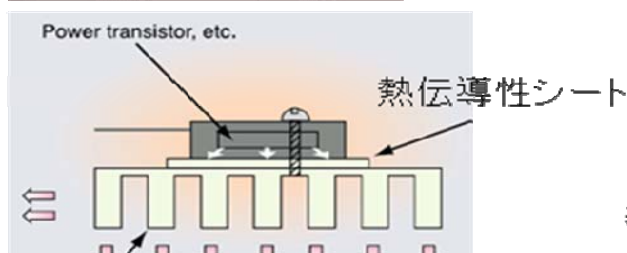


図 2.1.3-1 パワーデバイス周辺材料

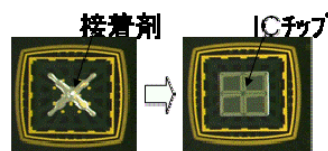


図 2.1.3-2 ICパッケージ（非絶縁 接着剤）

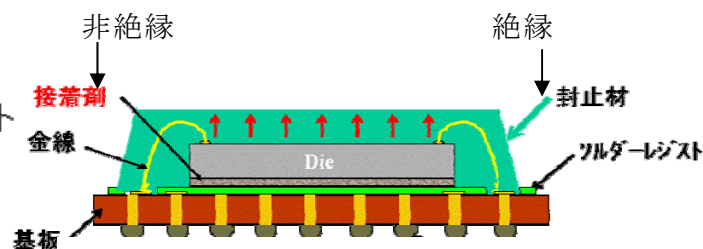


図 2.1.3-3 ICパッケージ

## 2.1.4 電気・電子材料 開発戦略

ここで開発する相反機能とは、具体的には図 2.1.4-1 のようなもので、従来非常に困難であった、2つの目標（高熱伝導性と絶縁性）を同時に満足させなければならない。

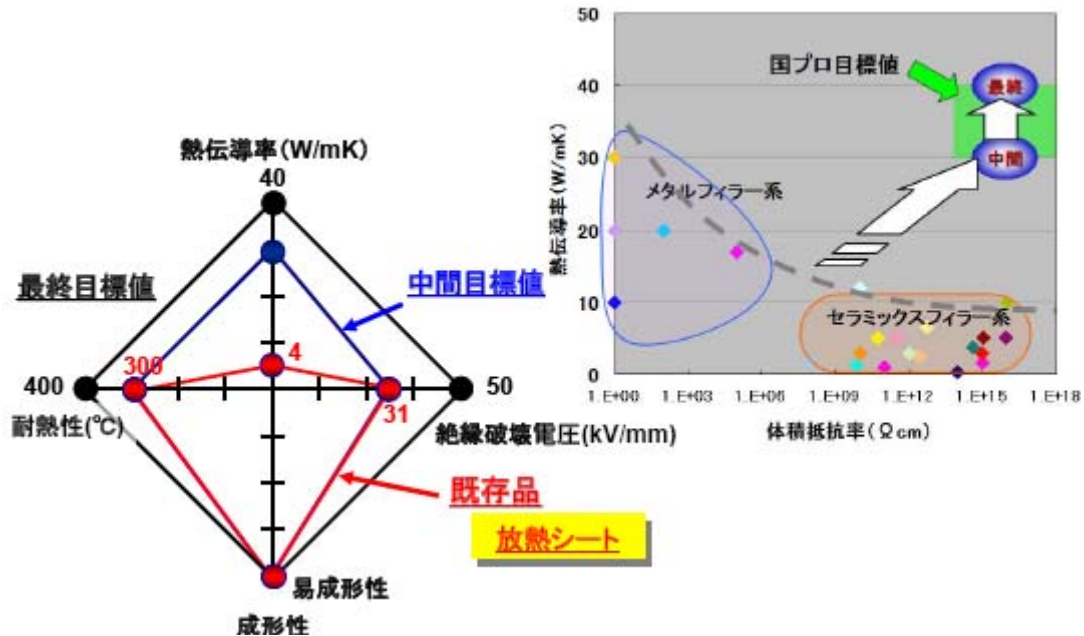


図 2.1.4-1 電気・電子材料開発目標と相反機能

単に高充填させた従来技術では、目標の高熱伝導性は得られないが、フィラーの表面修飾による樹脂中分散での低粘度化・界面熱抵抗の低減及び自己組織化・配向・配列による熱伝導パスの形成により相反機能を確立する。

## 2.1.5 光学材料 中間目標

研究開発項目①「超ハイブリッド材料創製技術開発」

①-C： 光学材料分野（屈折率材料）

[1] 低屈折率材料

鉛筆硬度（JIS K5600） $\geq 3H \Leftrightarrow$  屈折率 $\leq 1.42 \Leftrightarrow$  全光線透過率 $\geq 90\% \Leftrightarrow$  易成形性

MFR（メルトフローレイト JIS K7210） $\geq 10g/10min$

[2] 高屈折率材料

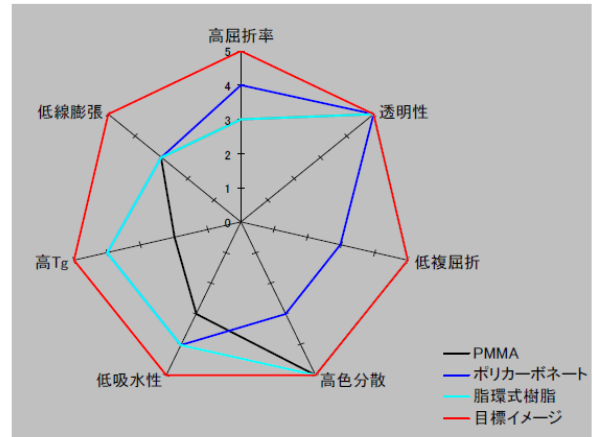
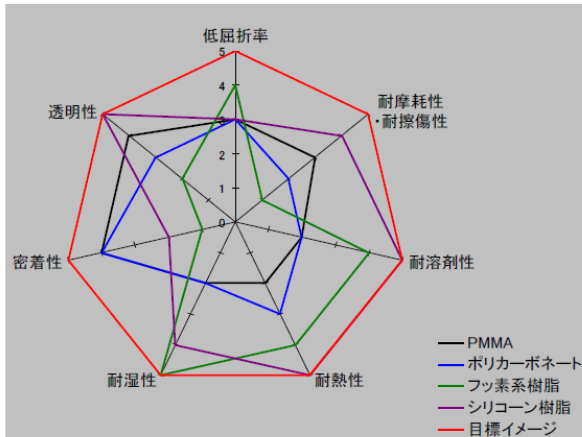
全光線透過率 $\geq 90\% \Leftrightarrow$  屈折率 $\geq 1.6 \Leftrightarrow$  易成形性 MFR（メルトフローレイト

JIS K7210） $\geq 10g/10min$

光学材料の実用化を踏まえた目標特性値を図 2.1.5-1 のレーダーチャートに示す。

【薄膜材料:フィルム、コーティング等】

【バルク材料:レンズ、封止材等】



超ハイブリッド技術 ⇒ 既存材料の欠点を克服した、バランス良い材料へ！

図 2.1.5-1 光学材料 諸特性目標値レーダーチャート

光学材料を開発する上での従来技術の問題点と光学材料（屈折率制御）開発の戦略について、図 2.1.5-2 にまとめた。

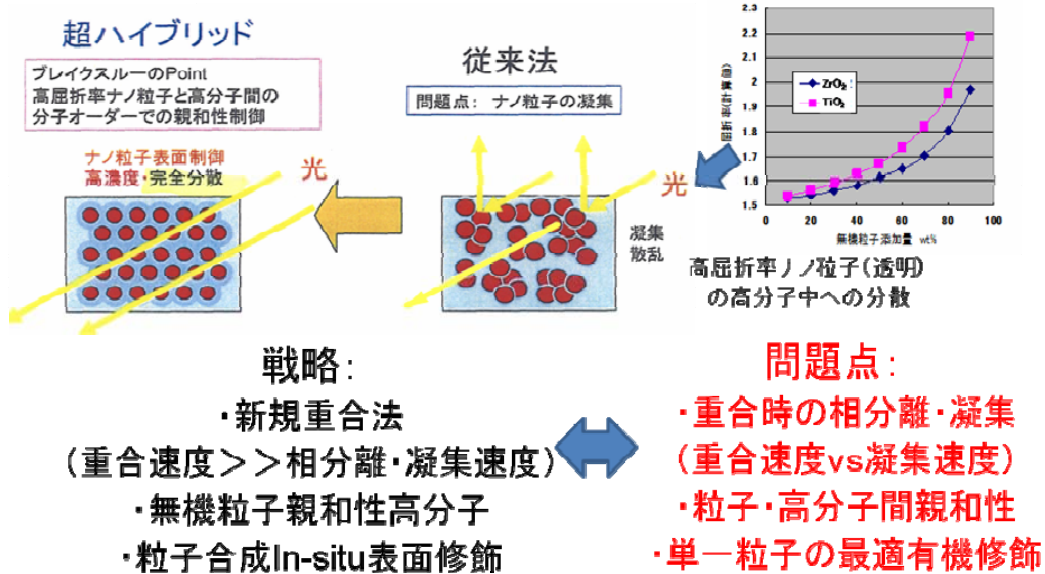


図 2.1.5-2 光学材料開発戦略

## 2. 1. 6 研究開発体制

各研究開発項目との相関図を図 2. 1. 6-1 及び開発体制を図 2. 1. 6-2 ( I、 II ) に示す。また、外部有識者の意見を伺う総調委員会とユーザー企業の意見を反映させる材料評価分科会を設置している。

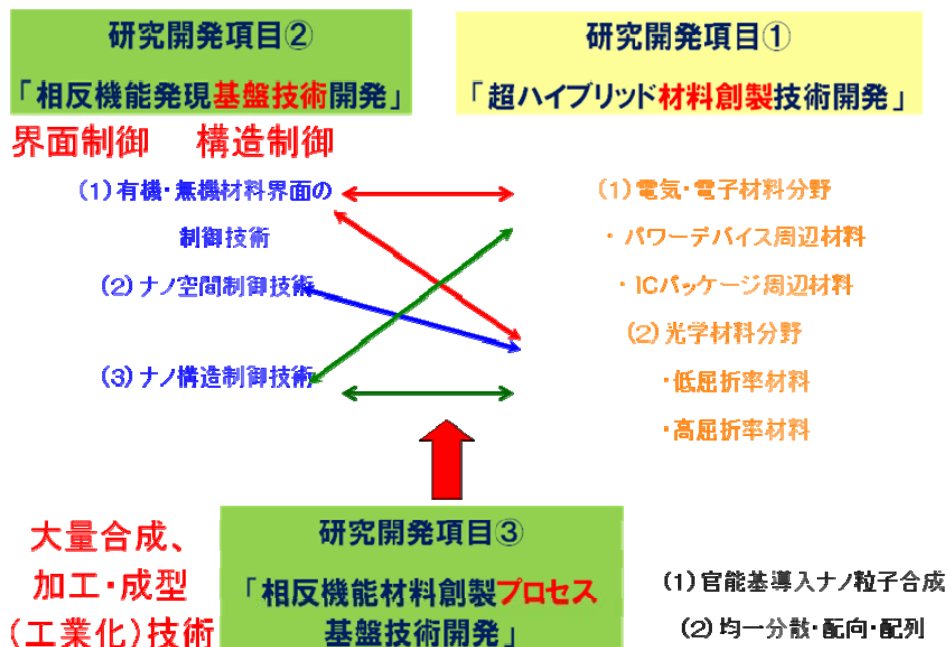


図 2. 1. 6-1 研究開発項目の相関図

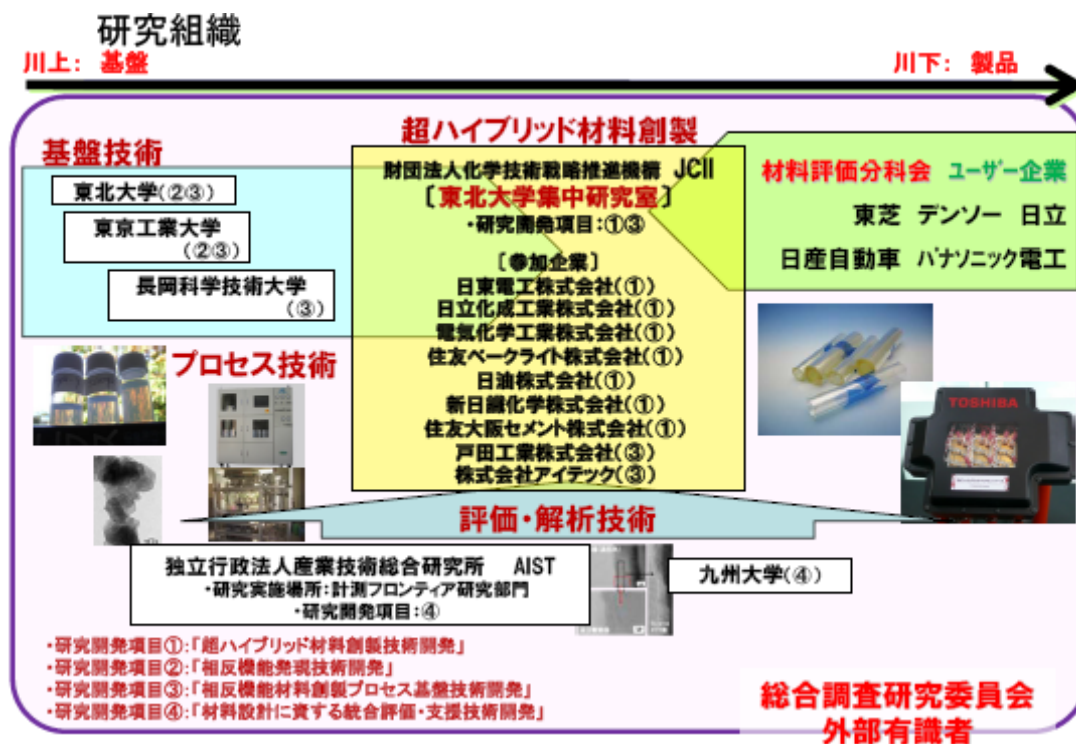


図 2. 1. 6-2 研究開発項目と研究体制 1

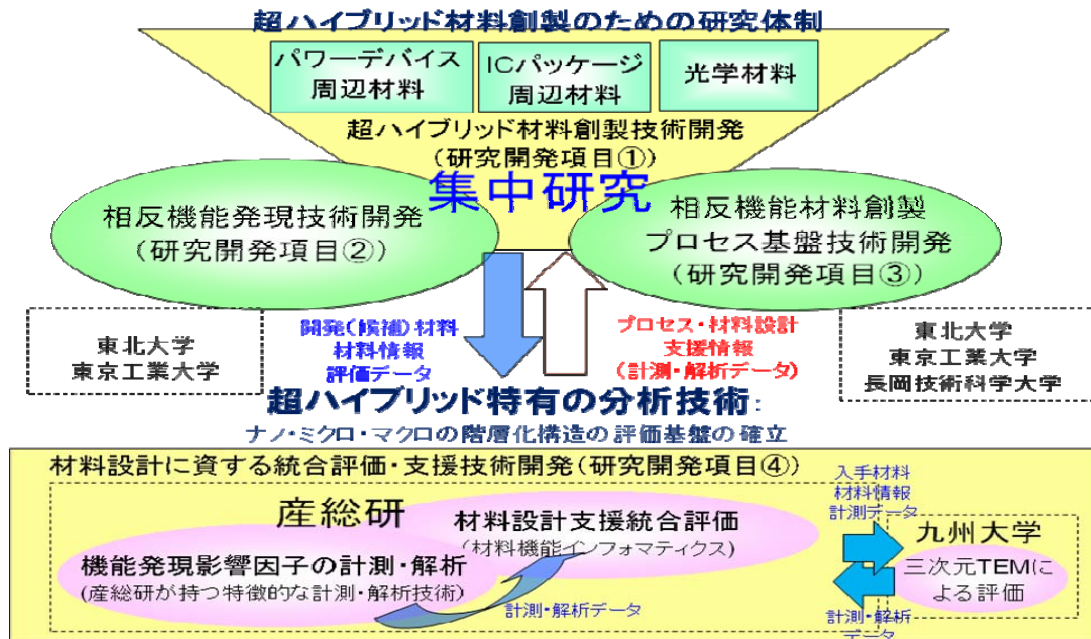


図 2.1.6-2 研究開発項目と研究体制 2

2. 1. 7 研究開発成果

2. 1. 7. 1 研究開発成果 まとめ

研究開発項目	成果	達成状況
①超ハイブリッド材料創製技術開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ IC パッケージ周辺材料 封止剤については、表面改質によりアルミナ粒子の高充填化が可能となり開発目標を達成した。 接着剤については、銀粒子のコアシェル化により目標を達成した。</li> <li>・ パワーデバイス周辺材料 高熱伝導フィラーの高充填化及び配向技術により目標を達成。</li> <li>・ 光学材料 (低・高屈折率材料) 目標値を達成、実用化に向けバランスの取れた材料設計へ。</li> </ul>	◎
②相反機能発現のための基盤技術開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 界面制御技術開発</li> <li>①超臨界水熱合成・In-situ 表面修飾を TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub> 粒子及び BN 粒子に適応し、高屈折率材料および高熱伝導材料へ供給できた。</li> <li>②高度水熱合成・表面修飾技術として高熱伝導フィラー h-BN の形成に成功した。</li> <li>③メカノケミカル分散・In-situ 表面修飾技術を TiO<sub>2</sub> 粒子、SiO<sub>2</sub> 粒子に実施した。</li> <li>・ 分散制御技術開発</li> <li>ナノ粒子系熱力学に基づき有機修飾分子の設計・合成指針を得ることが出来た。</li> <li>・ 構造制御技術開発</li> <li>新規重合法によりナノ粒子の均一分散を可能とした。</li> </ul>	◎

③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>・官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術 有機修飾ナノ粒子の流通式連続合成を実現し、光学材料、電気・電子材料の合成グループに提供した。</li> <li>・高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス ナノ秒パルスの高圧電界により、マトリックス中のナノ粒子を配列する手法を世界に先駆けて提案、実現。</li> <li>・プロセス最適化技術 産業規模へのスケールアップを目指し、キーとなる装置群、シミュレーション技術を開発。</li> </ul>	◎
④ 材料設計に資する統合評価・支援技術開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ハイブリッド構造解析技術基盤 超ハイブリッド材料特有の評価解析技術として、高分解能 TEM 固体 NMR、陽電子ビーム等の測定機を駆使し、開発性能機能と構造との相関を提供できた。</li> <li>・材料インフォマティクス 不均一系材料のゆらぎのマイクロ、マクロデータを統合解析する空間統計学（バリオグラムを材料構造ゆらぎデータに初めて適用開始。</li> </ul>	◎

研究開発成果は以下の表 2.1.7-1 にまとめた。

表 2.1.7-1 成果の外部発表一覧

研究開発項目	合計	研究開発項目 ①	研究開発項目 ②	研究開発項目 ③	研究開発項目 ④
論文および 国際学会発表	165報	29	69	66	1
国内 学会発表	92報	9	38	31	14
特許	18件	7	2	4	5
新聞雑誌	8件	0	2	6	0
国際学会招待 講演 (国内)	50件 (16件)	0	28 (8)	22 (8)	0
展示会	28 件	13	7	8	0



## 2. 2 研究開発項目② 相反機能発現基盤技術開発

東北大学 東京工業大学

### 開発の進め方 概要

従来型の高分子複合材料・高分子ナノコンポジットで行われてきた単なる混練り技術やハイブリッド化では達成し得なかったトレードオフ（相反機能）を回避・解消するために、充填無機ナノ粒子（無機ナノフィラー）と高分子マトリクスにおけるナノレベルでの界面・分散・構造制御の基盤技術の確立を目指す。

本研究開発項目② 相反機能発現基盤技術開発は、③ 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発、④ 材料設計に資する統合評価・支援技術開発とともに連携し、① 超ハイブリッド材料創製技術開発への共通基盤技術を開発する。すなわち、電気・電子材料（パワーデバイス、ICパッケージ）においては、その熱伝導性、絶縁性・耐熱性・接着性、易成型性を、一方、光学材料（屈折率制御材料）においてはその屈折率、透明性、加工性を同時に且つ合目的に実現可能とする。

以下、具体的制御項目を列挙する。

- |      |   |
|------|---|
| 界面制御 | ・ <i>in-situ</i> 有機修飾ナノ粒子合成   |
| 分散制御 | ・ 有機修飾基の設計<br>・ 修飾分子構造の最適化<br>・ 相互作用評価                              |
| 構造制御 | ・ 均一分散（光学材料創製）<br>・ 相分離構造（熱伝導材料創製）<br>・ 外場付与構造形成（光、電場・磁場付与 熱伝導材料創製） |

これまで得られた相反機能のための基盤技術まとめを表 2.2-1 に示す。

表 2. 2 -1 相反機能発現のための基盤技術

中間目標 の達成度	* 超臨界法による表面改質粒子の基盤技術を構築した。 * 高熱伝導 h-BN 粒子の合成と表面修飾に成功した。 * 表面改質粒子の分散性の定量的評価と相図を作成した。				
成果の意義	*ハイブリッド材料創製の基本である、表面改質粒子と樹脂との親和性の基本技術を得た。				
知的財産権 の取得	2 件				
成果の普及	論文及び 国際学会発表	国内学会発表	新聞雑誌	国際学会 招待講演 (国内)	展示会
	69 件	31 件	2 件	28(8)件	7 件
成果の最終目標 の達成可能性	計算機科学等の導入により、機構解明・速度論的な解明を進め高度な表面改質技術として構築を進める。				

中間目標に対する達成度と、最終目標は表 2.2-2 の通りである。

表 2.2-2 基盤技術 成果まとめ

実施項目		中間目標	最終目標	達成度	コメント
有機・無機材料の界面制御	超臨界法による粒子界面制御 (東北大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・有機修飾量の定量化</li> <li>・修飾機構の解明</li> <li>・修飾条件の最適化</li> </ul>	超臨界場を用いた有機修飾無機ナノ粒子合成の基盤技術の確立	◎	計算科学の援用による詳細な機構解明
	分子レベルでの面特異吸着による界面制御 (東北大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・h-BN ナノ粒子の合成と表面修飾, 形態制御・外場応答性表面修飾</li> <li>・チタニアナノ粒子の合成</li> </ul>	有機修飾分子の選択的吸着基盤技術の確立	◎	合成条件のさらなる最適化と配向制御
ナノ空間制御	低屈折率樹脂中の均一分散 (東北大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・単分散シリカライトナノ粒子の合成と形態制御</li> </ul>	単分散・高空隙率の無機ナノ粒子の合成と均一分散基盤技術の確立	◎	合成条件のさらなる最適化と分散性制御
ナノ構造制御	ナノ粒子表面の有機修飾 (東北大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・メカノケミカル分散</li> <li>・In-situ 表面修飾法</li> <li>・二段階重合法の最適化</li> </ul>	高濃度無機ナノ粒子複合高分子材料の作製基盤技術の確立	◎	分散および重合条件のさらなる最適化
	前駆体法による金属/無機ナノ粒子分散薄膜 (東工大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・金属ナノ粒子との親和性を制御したポリイミド前駆体構造の設計・合成</li> <li>・二重パーコレーション構造形成の最適化条件の探索</li> </ul>	高耐熱性屈折率制御高分子材料の作製基盤技術の確立	◎	相分離構造の生成条件および金属ナノ粒子の高濃度偏析の最適化
ナノ空間・構造制御手法最適化技術	表面修飾ナノ粒子と媒体との相互作用評価 (東北大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・表面修飾ナノ粒子の分性の定量的評価と相図の作成</li> </ul>	表面修飾無機ナノ粒子系の熱力学の確立	◎	計算科学の援用による詳細な解析
	パターン基板と表面修飾モデル粒子との相互作用解析による分散因子検証 (東北大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・親水・疎水パターン基板の設計・作製</li> <li>・表面修飾モデル粒子の特性解析</li> </ul>	高分子マトリクス中における分散状態の支配因子の解明	○	支配因子の物理化学的考察
	マイクロ相分離による材料開発および in-situ 光学測定法 (東工大)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・マイクロ相分離構造の生成条件の探索と制御</li> <li>・その場合光学特性評価手法の構築</li> </ul>	高分子複合系における配向構造制御基盤技術の確立	○	マイクロ相分離生成条件のさらなる制御

具体的な開発課題を以下に紹介する。

## 2. 2.1 界面制御

### 2. 2.1-1 超臨界水熱合成：ナノ粒子合成と *in-situ* 表面修飾

超臨界水とは、374 度以上、22.1MPa 以上の高温高压下にあり、海底火山の近くはこのような状態となっている。図 2. 2.2-1-1 に超臨界水熱合成法を用いた有機分子修飾無機ナノ粒子の作製プロセス、生成過程の概念図を示す。

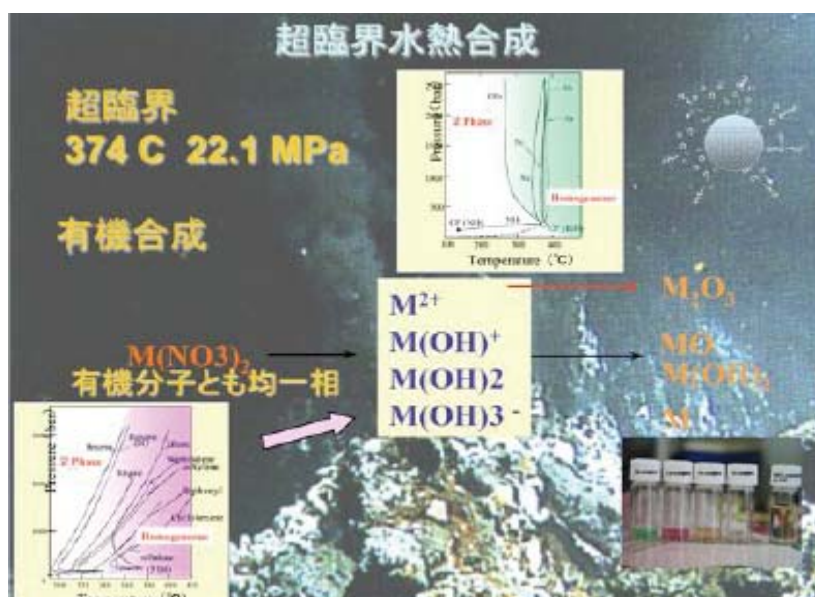


図 2. 2. 1-1-1 超臨界水熱合成の概念

この手法は材料合成に対して様々なメリットを有する。まず、誘電率が極性有機分子と同等まで低下することにより、有機分子とも均一混合するようになる。また、超臨界水において水分子間の引力を熱エネルギーの方が上まわり、「密度の高い水蒸気」のような挙動を示すため、水素、酸素などのガスとも均一に混合する

金属の酢酸塩、硝酸塩など金属塩の水溶液を加熱すると、金属イオンと水とが反応して金属水酸化物、金属酸化物が生成される。この水熱反応を超臨界水中で進行させることにより、有機溶媒、気体の存在下で酸化物ナノ粒子を合成することが可能となる。その結果、ナノ粒子の表面に有機分子が結合した有機無機ハイブリッドナノ粒子、還元雰囲気中での金属ナノ粒子の合成が実現できる。生成した有機無機ハイブリッドナノ粒子は図 2. 2. 1-1-2 左のような構造を有し、ナノ粒子の界面化学特性を制御することが可能となり、図 2. 2. 1-1-2 右のように様々な有機溶剤中への分散が期待できる。

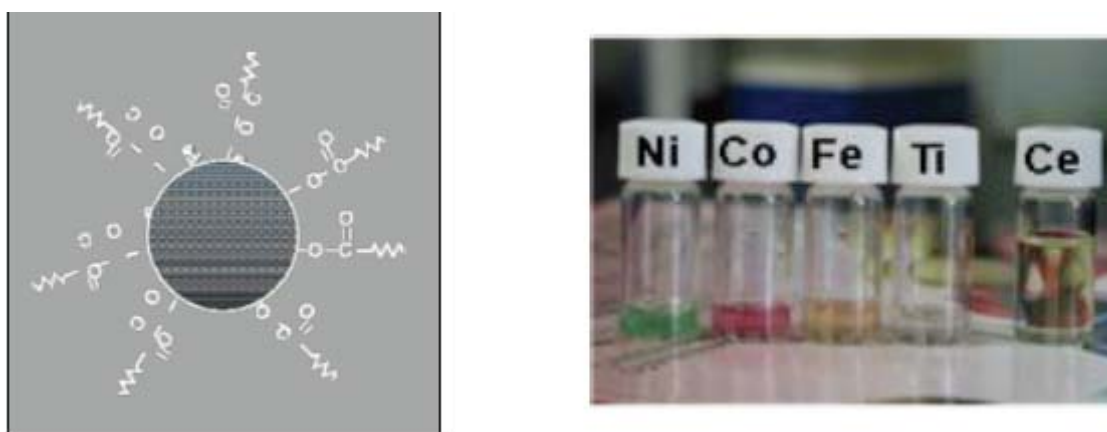


図 2. 2. 1-1-2 超ハイブリッド粒子の構造 (左) と有機溶剤中への均一分散 (右)

### 2. 2. 1-2 *In-situ* 表面修飾の機構解明と最適条件

本プロジェクトでは、この合成場において有機分子を酸化物ナノ粒子表面に修飾する反応 (*in-situ*

表面修飾反応) の機構解明を行った。その結果、有機修飾量が最大となり、表面修飾に最適な pH が存在することが明らかとなった(図 2. 2. 1-2-1)。この図にナノ粒子のゼータポテンシャル、COOH 基の等電点から計算した COO<sup>-</sup>濃度を重ねて表示すると、ナノ粒子表面が正の電荷を有し、COOH 基が解離して負の電荷を持つ pH において有機修飾が進行することが明らかとなった。今後、超臨界場での解離の評価、等電点 (IEP) の評価、計算科学の援用により、詳細な機構解明を進めていく。

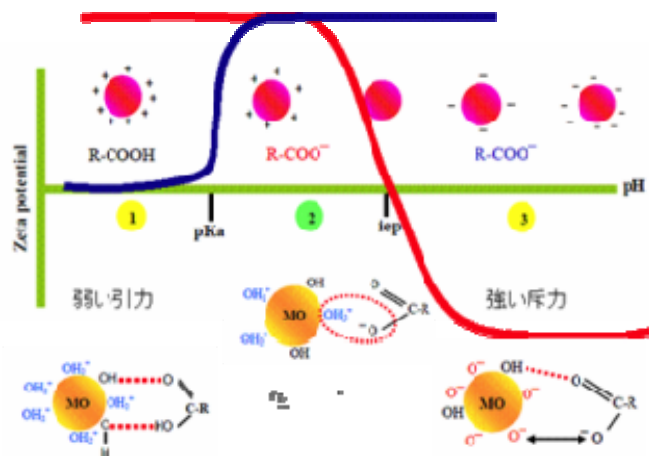


図 2. 2. 1-2- 1 *In-situ* 表面修飾の機構とその最適条件

### 2. 2. 1-3 超臨界法で合成した有機分子修飾ナノ粒子

様々な金属酸化物ナノ粒子の合成も可能であり、TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub> など様々な機能性酸化物について、表面修飾ハイブリッドナノ粒子の合成を実現している。これらのナノ粒子は高屈折率ハイブリッド材料創製に提供している。

### 2. 2. 1-4 超臨界法で合成した有機分子修飾 TiO<sub>2</sub> ナノ粒子に高分子を結合

本基盤研究では、合成した有機分子修飾酸化物ナノ粒子に高分子を結合することで、ポリマーハイブリッド酸化物ナノ粒子を合成することにも成功している。

### 2. 2. 1-5 空間制御技術のための単分散 silicalite-1 の合成

ゼオライト粒子としては、人工ゼオライトであるシリカライト 1 に注目し、その単分散化および粒径制御の検討を行った。ここで、構造指向剤とは、その周囲にポリケイ酸イオンを引き寄せ前駆体を作製させ、ゼオライトの構造形成に利用するものである。シリカライト粒子を合成した。

得られた粒子は焼成後、XRD、FE-SEM 等によりキャラクタリゼーションを行った。

### 2. 2. 1-6 構造指向剤共存下での非晶質シリカナノ粒子水熱合成

構造指向剤として TPAOH をもちい、TPAOH とシリカ源との比をモル比で 0.2-0.5 まで変えることによりシリカライト 1 の合成検討を行った。面修飾・さらにはポリマー中に均一分散させることにより、ゼオライトナノ粒子の屈折率制御材料への展開を検討している。

## 2. 2.1-7 メカノケミカル分散・*in-situ* 表面修飾

粉碎法としてメカノケミカル分散法を用いた。ビーズミル法は粉碎媒体のビーズを粉碎室の中でアジテータを高速回転させることによって、ビーズを攪拌し、ビーズに運動エネルギーを付与し、この運動エネルギーを持ったビーズに粒子を捕捉させて摩擦、衝突、せん断等のビーズが持つ運動エネルギーで凝集された粒子を粉碎・分散する。粒子に与える力はビーズのアジテータ速度や所要ビーズの質量によって制御できるため、粒子の結晶構造にダメージを与えず、分散させることができる。ビーズとして、 $\text{TiO}_2$ より密度が高く、耐磨耗性が高いジルコニア粒子（密度  $5.89 \text{ g/cm}^3$ ）を用いた。また、 $\text{TiO}_2$ ナノ粒子表面に存在する水酸基に起因するもので、酸化チタン粉末を溶媒に懸濁する際、高度に分散させ、粒子同士の凝集を防ぐ方法としては、塩酸、硫酸あるいは有機酸などの酸を存在させ、懸濁液の pH を酸性側に調整するか、あるいは水酸化ナトリウム等のアルカリを存在させ懸濁液の pH をアルカリ側に調整する方法が知られている。そこで、 $\text{TiO}_2$ ナノ粒子と有機溶媒・モノマー、ポリマーとの親和性を向上させるため、アルキル基を有する飽和脂肪酸および不飽和脂肪酸を検討した。

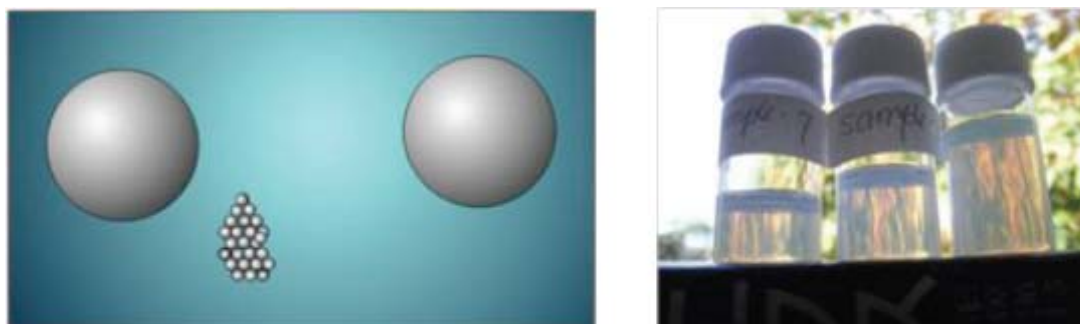


図 2. 2.1-7-1 メカノケミカル分散・*In-situ* 表面修飾の概念図（左図）、  
得られた  $\text{TiO}_2$ ナノ粒子のトルエン分散液（右図）

## 2. 2.2 分散制御

### 2. 2.2-1 有機分子修飾ナノ粒子の設計 有機溶媒中での分散安定性

酸化物ナノ粒子表面への有機分子修飾により、有機溶媒中への分散を実現できるが、本プロジェクトでは、さらに有機修飾ナノ粒子の溶解度の測定し、この溶解度、分散安定性を支配する要因の解明を行っている。まず、有機分子修飾酸化セリウムナノ粒子を合成し、様々な濃度で有機溶媒中に分散し、曇点の評価から溶解度を評価した。

得られた結果を基に溶解度を評価することで、これは、既存の液-液系の溶解度曲線に類似しており、有機分子修飾ナノ粒子を分子や連続相として取り扱うことができることを示唆している。現在、高分子科学の分野で用いられている溶解度パラメータなどの指標を用いつつ、溶解度の推算と共に修飾分子の設計を進めていく。

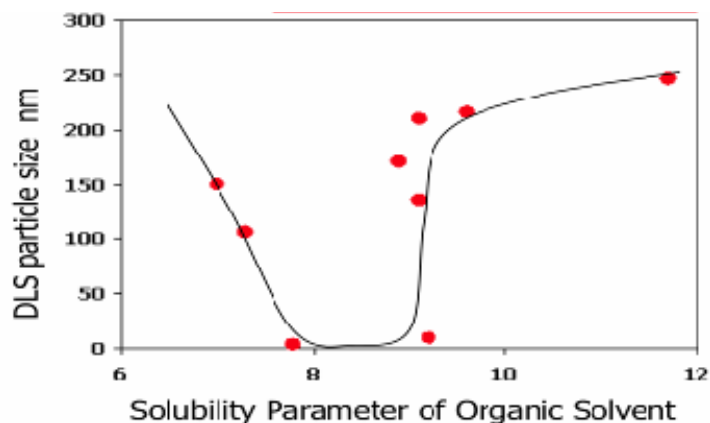


図 2. 2.2-1-2 有機分子修飾ナノ粒子の溶解度曲線と溶解度パラメータ

### 2. 2.2-2 有機分子修飾無機ナノ粒子の設計 高分子との親和性評価

ポリマーとの親和性を評価する方法として、固体基板上への無機ナノ粒子の吸着挙動の解析を行っている。ナノ粒子が分子種と同様な吸着挙動を示すとみなし (図 2. 2.2-2-1)、その吸着過程を Langmuir 吸着モデルで考えると、吸着量  $q$  は飽和吸着量  $q_{\max}$ 、溶媒中の濃度  $C$ 、平衡定数  $K$  を用いて以下のように表される。

$$q = \frac{q_{\max} KC}{1 + KC}$$

ここで、平衡定数  $K$  は

$$K = \exp\left(-\frac{\Delta H_{ads}}{RT}\right)$$

で表されるので、吸着量の評価から平衡定数を求め、ここから吸着エネルギーを求めることが可能となる。ここで基板にポリマー材料を用いれば、ポリマーとナノ粒子間の親和性を吸着エネルギーとして評価できる。

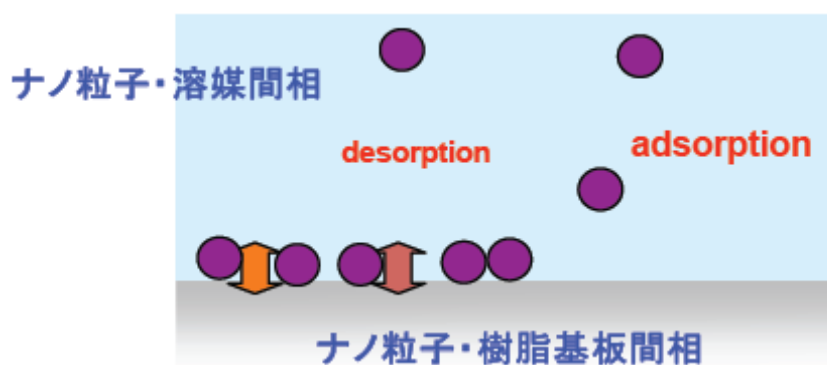


図 2. 2.2-2-1 溶液中での有機分子修飾ナノ粒子—基板間相互作用

この考えに基づき、これまでにナノ粒子分散液中に浸漬した基板上へのナノ粒子の吸着、脱着過程を調べると共に、その基板、溶媒依存性を評価している。さらにその経時変化をもとに、吸着平衡定数の評価にも取り組んでいる。

さらに、高分子マトリクス中への無機ナノ粒子の分散を評価するため、種々の官能基をパターンニングした基板を高分子マトリクスに見立てることで、基板上へのナノ粒子の吸着・凝集挙動から、ナノ粒子と基板すなわち、高分子マトリクスとの相互作用を評価することができる。ナノ粒子の吸着平衡は、ナノ粒子と溶媒、ナノ粒子と基板、溶媒と基板との相互作用のバランスで決まるので、ナノ粒子のゼータ電位、および基板のゼータ電位と相互評価することが大切となる。

## 2. 2.3 構造制御

### 2. 2.3-1 高屈折率材料開発の戦略

構造制御について、高屈折率光学材料開発を例にその材料開発戦略を述べる。従来より無機ナノ粒子の充填が高分子マトリクスに対して行われてきたが、高屈折率を達成するために高濃度充填を行うと基本的に凝集体が生成する。さらに、モノマーおよびプレポリマーマトリクス中に無機ナノ粒子を均一分散させても、その後の重合過程でやはり凝集が生じ、散乱損失の大きい、不透明な光学材料となる。

ここでは、無機ナノ粒子に表面修飾を施したため、高分子マトリクス中への親和性は格段に向上しており、さらに、新規重合法の導入によって、重合速度が相分離・凝集速度を上まわる最適条件を達成により、従来の問題点を解決しようとする戦略である。

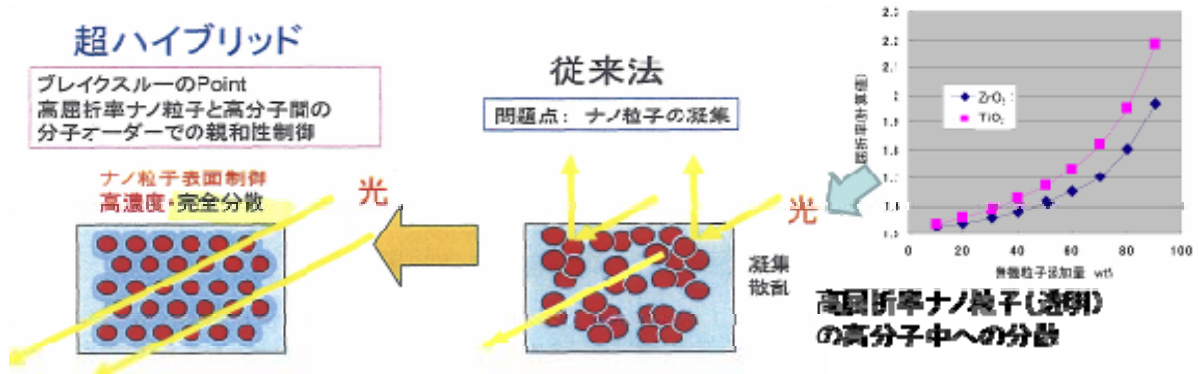


図 2. 2.3-1-1 超ハイブリッド高屈折率材料開発の戦略

### 2. 2.3-4 高熱伝導材料開発の戦略

次に、構造制御について、高熱伝導材料開発を例にその材料開発戦略を述べる。従来のように、無機ナノ粒子を大量に高分子マトリクス中に充填すると、界面熱抵抗の上昇、成形・加工性の著しい低下を招いた。これに対して、高分子マトリクスにおける相分離構造や自己組織化構造、外場印加による無機ナノ粒子の配向・配列制御を行い、ナノ粒子同士の連結構造、すなわち熱伝導パスを構築することが重要となる。このような材料開発戦略は、無機ナノ粒子の合目的表面修飾基盤技術の確立に帰着される。

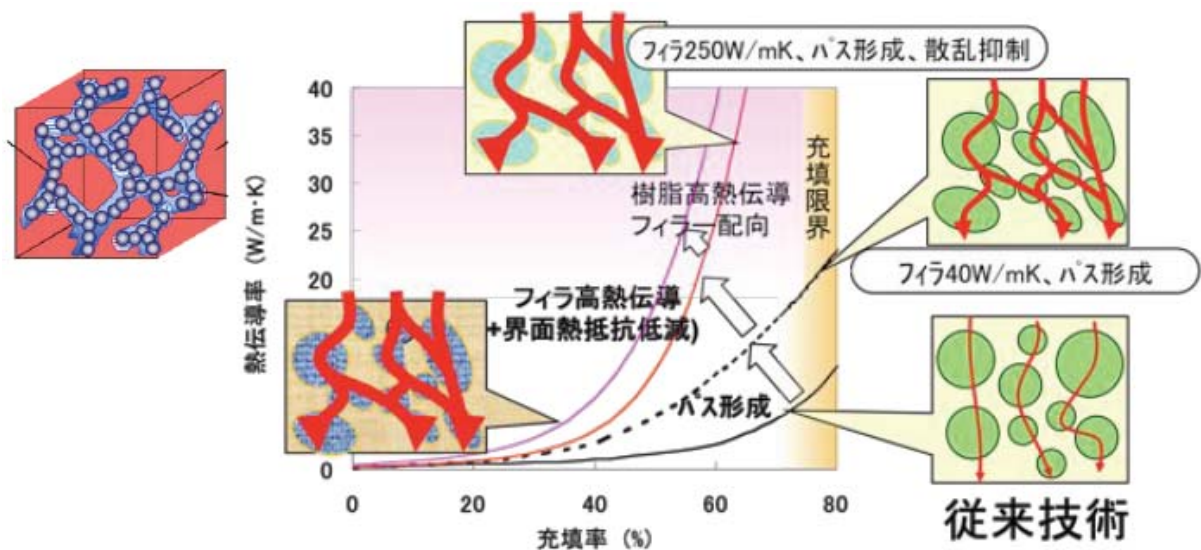


図2. 2.3-4-1 超ハイブリッド高熱伝導材料開発の戦略

### 2. 2.3-5 ミクロ相分離：ナノ粒子の配列制御

銀ナノ粒子に対して親和性の異なる2種のポリイミド (PI) 共重合体を用いて、PIマトリクス中で熱還元を行うと、銀ナノ粒子が一方の相に選択的に析出することを報告している。そこで、2種のPI前駆体のブレンド物を用いて相分離構造を発現させ、加熱イミド化時に銀ナノ粒子を連続相に選択的に析出させることで、他方がナノ粒子の排除領域となり、面外方向に銀ナノ粒子が並んだ熱伝導パス形成を促進し、効率的に熱伝導率を向上させる新たな材料設計を提案し、その妥当性を検証した。ブレンド比及び製膜条件を最適化することで、スピコート法による製膜過程においてSD相とTF相が膜厚方向に共に連なる“二重パーコレーション”型相分離構造を自発的に形成するハイブリッド薄膜の調製に成功した。薄膜の熱伝導率を効率的に向上させる新たな材料設計指針として有効であることが示された。

### 2. 2.3-6 光励起重合：ナノ粒子の配向制御 (1)

重合様式の異なる2種類のモノマー (例えば：ラジカル/カチオン/熱重合性樹脂) 中に完全分散する表面修飾ナノ粒子を対象として、レーザー誘起パターン形成させる。2種類のモノマー中に分



散したナノ粒子をパターン内、あるいはパターン近傍に選択的に移動させ、配列制御を行う。モノマーについて、ラジカル重合性モノマーはそれぞれ粘度の異なった3官能アクリレート系及び4官能を選択した。またカチオン重合性モノマーとして、エポキシ系を選択した。

光照射により、ラジカル反応及びカチオン反応が同時に励起されることになるが、ナノ粒子を配列させるため、この二種類の反応がそれぞれ別に励起させなければならない。そこで、これら二種類の反応を、異なった光の波長励起できるように、開始剤を適切に選択した。上記の2種類のモノマーを混合させた場合、 $Ar^+$ レーザーやYAGレーザーを照射させると一方のみ硬化させることが出来る。

#### 2. 2.3-7 光励起重合：ナノ粒子の配向制御（2）

偏光顕微鏡観察により、モノマーが全面的に硬化されたにも関わらず、レーザーสキャンによる照射部分の明瞭な硬化パターンの確認ができた。これより、レーザーの描画により永久的な屈折率差が生じたと評価できる。即ち、レーザー光の照射により、硬化されたポリマーと未硬化モノマー中の $TiO_2$ の濃度勾配が形成され、ナノ粒子の選択的配列が達成できた。今後は屈折率分布および配列効果の最適化を定量的に測定し、他のナノ粒子配列にも適用できる基盤技術としての実証を行う。

#### 2. 2.3-8 電場・磁場印加：ナノ粒子の配向制御

形態制御官能基を有する有機液晶としては、誘電率異方性が負で、アミノ基を有する棒状液晶分子を合成した。また、誘電率異方性が正のフッ素系液晶性部位を有する2種類のアミンおよびカルボン酸を合成し、これらを用いた形態制御ナノ粒子の合成を行った。

さらに、これらの液晶分子は高熱伝導性材料開発のため、窒化ホウ素粒子の表面修飾剤としても現在、評価を行っている。

## 2. 3 ③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

東北大学 東京工業大学 長岡技術科学大学  
(財) 化学技術戦略推進機構

### 2. 3. 1 概要

本プロジェクトでは、ハイブリッドナノ材料の産業化を目指し、研究項目③でプロセス基盤技術の開発を行っている。産業化に必要な合成スケールを評価すると、市場規模10億円、価格10万円/kgとの仮定の下、年に10tの生産規模となる。そこで、従来は回分式反応装置を用いるハイブリッドナノ粒子合成を連続式合成装置を用いて行う技術の開発が必要となる。また、本プロジェクトの基盤研究では均一分散・配向・配列手法の開発を行っているが、これを工業スケールで行う手法の開発、連続式合成装置のスケールアップ技術が重要となる。そこで、本研究開発項目では、(1)官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術、(2)高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス、(3)プロセス最適化技術を研究課題として定めた。

開発のスケジュールとして、課題1 官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術 では、高屈折 $ZrO_2$ ナノ粒子の流通式合成、ハイブリッド化ナノ粒子の流通式合成、各課題の要請に基づく流通式大量合成を行う。課題2 高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス では研究開発項目②基盤技術開発での技術開発を受け、基盤技術研究の成果に立脚するプロセス技術の開発を行う。また、課題3 プロセス最適化技術では、流通式装置の導入と課題の抽出、スケールアップ基盤技術、可視化技術の開発、大量合成、配列複合化装置設計技術の確立を行う。これらの技術開発を通じて、プロジェクト終了時までには、工業化を視野に入れたプロセス技術を確立することを目的とする。

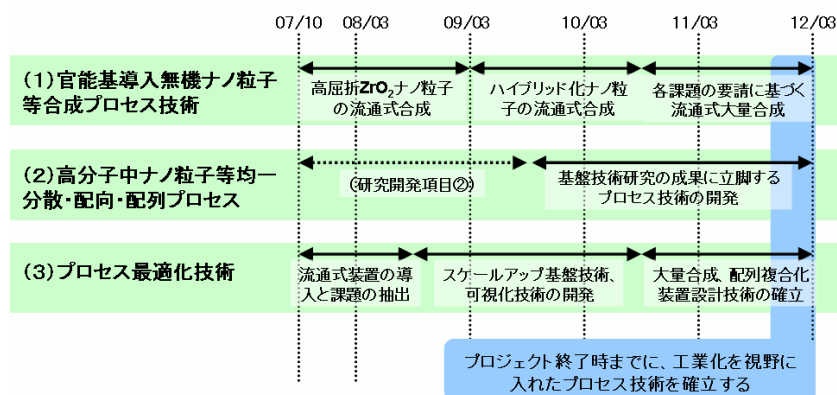


図2.3.1-1 開発のスケジュール

### 2. 3. 2 官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術

課題1の官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術では、流通式反応装置を用いたハイブリッドナノ粒子の合成を目指した。回分式反応装置で得た知見を元に、10 g/h程度の規模での流通式装置合成を目指すと共に、ここで得られたナノ粒子を研究開発項目①に提供することを目的とする。

回分式装置では反応器外部から伝熱により原料溶液を加熱、ナノ粒子を合成するのに対して、流通式装置では原料溶液と加熱した水を混合することにより原料溶液を加熱する。その結果、流通式装置では、原料溶液を瞬間的に加熱することができ、粒子径が小さく、均一なナノ粒子の合成に成功した。この技術開発において、反応流路の閉塞、管内壁の腐食などの課題が発生し、これを解決したが、この知見が後で述べるスケールアップ技術の開発につながっている。その結果、10 g/h程度の規模で有機分子修飾された酸化物ナノ粒子の合成に成功した。

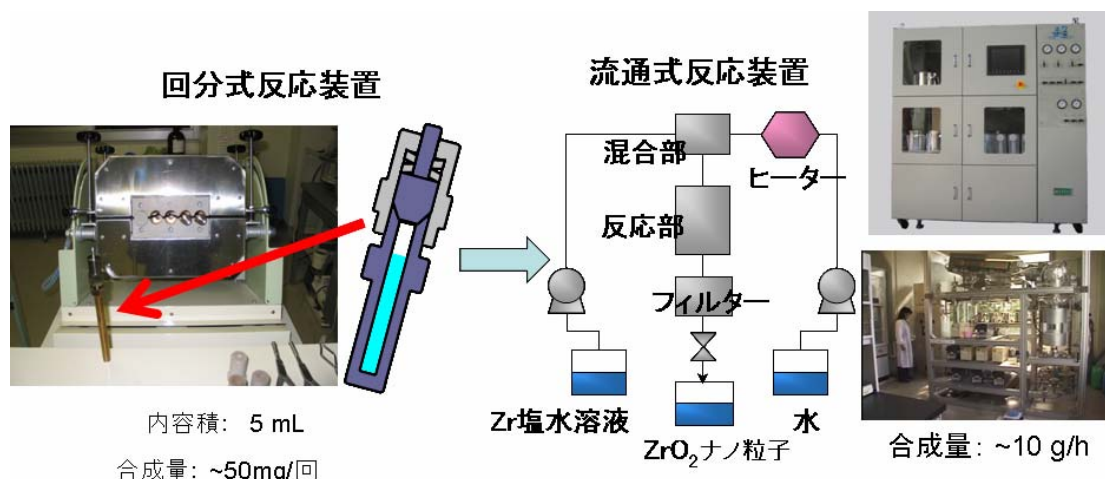


図2.3.2-1 流通式反応装置でのハイブリッドナノ粒子合成

開発した装置を用いて、高分散性 $ZrO_2$ ナノ粒子の合成を行った。ラウリン酸で修飾することで、有機分子に分散するナノ粒子の合成に成功すると共に、回収する際のpH調整によって水中分散するナノ粒子の合成にも成功した。それぞれ平均粒子径は11, 8 nm程度である。合成した表面修飾 $ZnO_2$ ナノ粒子は研究開発項目①の光学材料合成グループに提供し、高屈折光学材料の開発に用いられている。

### 2. 3. 3 高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス

課題2 高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセスでは、電界による配向制御を行っている。ある誘電率を持つ材料を電界中におくと誘電分極が生じ、その異方性に従って材料にトルクがかかる。原理的にはこのメカニズムでナノ材料の配向を行うことができるが、本プロジェクトが扱う相反機能を実現する電気伝導度の小さな材料の場合、誘電分極が小さいため、かかるトルクが小さくなる。従って、印可する電圧を高くする必要があるが、一方マトリックスの絶縁破壊が生じると、材料として利用できなくなる。そこで、ナノ材料の配向を目的として、超高電圧ナノ秒パルス電源を世界で初めてナノ材料の配向に応用した。

### 2. 3. 4 プロセス最適化技術

課題3 プロセス最適化技術では、流通式装置を用いたハイブリッドナノ材料合成のさらなるスケールアップを目的とし、必要な技術開発課題の抽出を行った。まず、原料の供給、生成物の回収のスケールアップが必要となり、1) 高濃度スラリー供給、2) 高濃度ナノ粒子回収技術の開発を行う。また、課題1でもあるように、流通式装置を用いた合成の際に反応管の腐食、閉塞が課題となったため、更なるスケールアップを目指して 3) 腐食防止、4) 閉塞防止 技術の開発を行う。また、ナノ粒子の合成において、原料溶液と加熱水との混合部の設計は、均一なナノ粒子を合成するために最も重要な部分となる。そこで、スケールアップを行っても微小なナノ粒子を合成できるよう、5) 装置内の可視化と合理的設計手法の開発を行う。

### 流通式装置における課題抽出

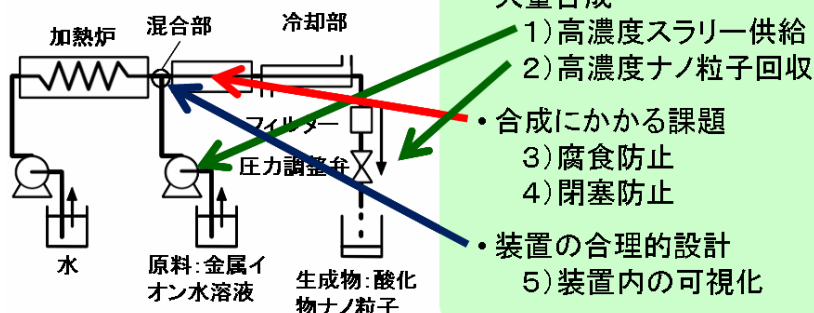


図2. 3. 4-1 スケールアップに向けた課題

まず、原料供給、生成物回収のスケールアップを実現するために、連続スラリー供給装置、連続回収装置の開発を行った。具体的には、溶解度以上の金属塩を含む濃厚原料溶液やBNナノ粒子を含む原料溶液といった固体を含む原料溶液の送液を実現するために、連続スラリー供給装置を開発した。また、生成物が高濃度に含まれる溶液を回収する装置の開発を行った。流通式装置を用いたナノ粒子合成において、反応は300気圧程度の高圧下で行われる。生成される溶液を常圧で回収するため、従来は圧力によって流路の狭さを調整する背圧弁が用いられてきたが、これをそのまま利用するのでは、流路が高濃度のナノ粒子で閉塞する可能性がある。そこで、生成物をいったん筒内に受けて、半回分式に圧力解放、回収を行う装置の開発を行った。これら、従来は存在しない装置群の開発により、大量合成を目指す。

続いて、装置内での腐食防止、閉塞防止を実現する技術の開発を行った。酸化物ナノ粒子は、金属酢酸塩、金属硝酸塩などを原料として合成しており、ナノ粒子の合成に伴い副生成物として酢酸や硝酸が生成される。スケールアップに伴い原料濃度を高くすると、生成される酸濃度も高くなり、反応管内壁の腐食につながる。そこで、高濃度の酸に対して耐えることのできる反応管の開発を行った。効果、コストの観点から評価を行い、最適装置材料を見だし、400℃、30MPaの条件で、濃度1.0M硝酸に耐えることが可能であることを見いだした。今後、更なる最適化を進める。

また、スケールアップに伴う生成ナノ粒子濃度の増大により、反応管内においてナノ粒子の閉塞が懸念される。特に、原料水溶液と加熱水との混合部で管壁内へのナノ粒子の付着と成長による閉塞が予測されるので、後述する流れの可視化によってその防止を目指した。

流通式装置の原料混合部付近における流れの状態を明らかにするために、石英製の透明セルを作成し、これを用いた流れの可視化手法の開発を行った。これに加えて、流体シミュレーションコードの開発を行った。シミュレーションの予備的な検討により、混合部近傍での渦流の発生が確認でき、これが粗大粒子や閉塞につながっていることが示唆される。今後、同条件で実験結果とシミュレーションの結果を比較することでシミュレーションの妥当性を確認した後、シミュレーションを用いた反応器の設計を進めて行く。

このようにして開発した流れ場のシミュレータは、反応機構、反応速度と併せることで、ナノ粒子の合成シミュレーションを行うことが可能となる。これにより、さらに微細なナノ粒子の合成を実現する混合部形状の設計が可能となる。現在、反応速度手法を評価する手法の開発を行っており、反応率の評価から反応速度定数を評価する手法の確立を進めている。

### ナノ粒子合成のシミュレーション

反応管内の流れ、濃度、温度分布 + 反応速度 = ナノ粒子合成シミュレーション  
装置形状設計ツール

### 反応速度手法の評価方法の提案

高温部滞留時間=反応時間

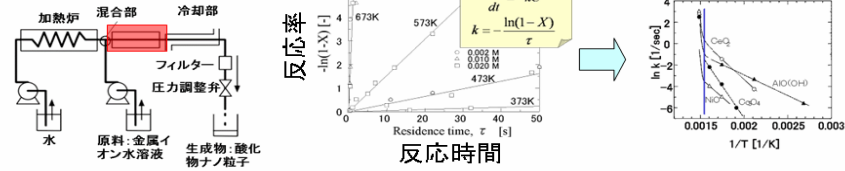


図2.3.4-4 実験、シミュレーションによる流れの可視化手法の開発

表2.3 -1 プロセス開発課題とその達成度

	研究開発項目	中間目標の概要	達成状況
(1)官能基導入無機ナノ粒子等合成プロセス技術	(1)-1 超臨界法によるナノ粒子合成基盤技術開発	流通式装置を開発すると共に、合成時の課題を(1)-3に提供する	◎
	(1)-2 液中レーザーを用いた銀ナノシート形成技術開発	液中レーザー法によって合成されたBNナノシートを配向するプロセスを開発する	○
	(1)-3 超臨界水熱合成装置の開発	流通式装置のスケールアップに必要な装置群を開発する	◎
	(1)-4 超臨界水反応による高速大量表面修飾プロセス開発	研究開発項目①に提供する高分散ナノ粒子の合成プロセスを開発する	◎
(2)高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス技術開発	(2)-1 高分子中ナノ粒子等均一分散・配向・配列プロセス基盤技術開発	光、電場、磁場を用いた高分子中ナノ粒子のプロセス技術の可能性を評価する	○
	(2)-2 延伸熱処理による無機ナノ粒子の配向・配列制御技術開発	相分離挙動を示す高分子を利用して二重パーコレーション構造を実現する	○
(3)プロセス最適化技術	(3) プロセス最適化技術	スケールアップ時の諸問題を解決するin situ観測に着手する	○

表 2.3 -2 相反機能創製プロセス基盤技術開発まとめ

中間目標 の達成度	*超臨界法による高効率の表面改質粒子形成プロセスを構築した。 *ナノ秒パルス電源によるBN ナノシートの樹脂中配列制御に成功				
成果の意義	*世界最高能力を有する超臨界法表面改質粒子形成を確保 *世界で始めて、電場による樹脂中でのナノシートの配列に成功				
知的財産権 の取得	4 件				
成果の普及	論文及び 国際学会発 表	国内学会発表	新聞雑誌	国際学会 招待講演 (国内)	展示会
	66 件	31 件	6 件	22(8)件	8 件
成果の最終目標 の達成可能性	超臨界法粒子改質プロセスは1 トン/年の能力を持つシステムとして 21 年度に完成、更に安定性・生産性を追及し高度化を狙う。 配列プロセスの実用化課題を開発継続する。				

### III. 研究開発成果について

## 2. 研究開発項目毎の成果（(財)化学技術戦略推進機構・(独)産業技術総合研究所）

### 2.4 ④材料設計に資する統合評価・支援技術開発

#### 2.4.1 研究開発の位置づけと目標

本研究開発項目の最終目標は次のとおりである。

##### 【最終目標】

相反機能材料の表面・界面、バルク・深さ方向の構造及び状態をナノレベルまでの分解能で複合的・多元的に解明できる計測手法を構築する。得られた計測結果に開発部材の機能評価、相反機能発現・相反機能材料創製過程における評価から得られる分解能、雰囲気などが異なる階層的なデータを統合、情報科学的に処理し、機能発現に関わる経験則などの新しい知識体系として取り出すための手法を開発する。得られた結果を超ハイブリッド材料の設計に反映させる。

即ち、超ハイブリッド材料開発プロジェクトの JCII グループにおいて、材料の微細構造や局所物性、構造不均質性の計測・解析技術開発を行い、材料設計に資する情報をプロジェクト・材料開発グループに提供する。この目的のため、九州大学、産業技術総合研究所が有する特殊な計測、専門性の高い解析技術を基に、主に材料組成の分布や不均質性、化学結合状態などを計測するとともに、それら情報を統合的に解析するための手法を開発する。また、それらの計測、解析結果を研究開発項目①～③に提供することを目標としている。

本研究開発項目において計測・評価を実施する具体的な対象を決めるにあたり、

- ・超ハイブリッド材料の機能や特性の発現に重要な影響を与える可能性が高い材料構造や局所物性（材料開発や基盤開発における計測・解析ニーズ）

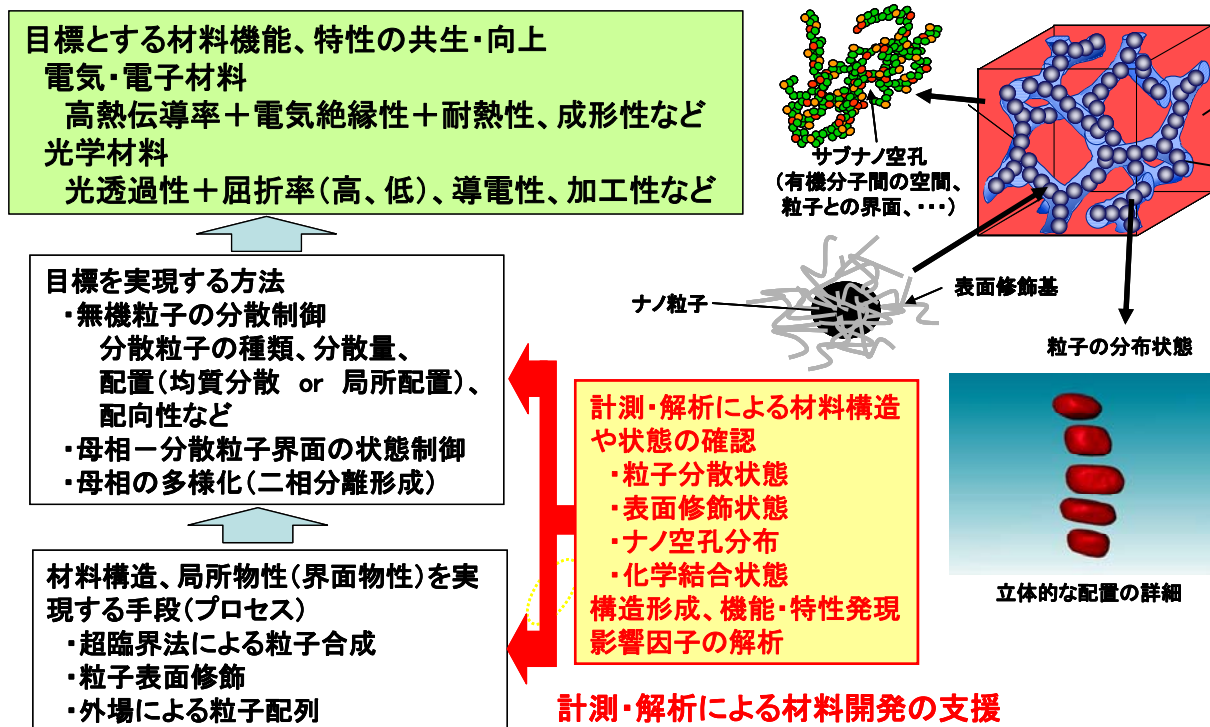


図2.4.1-1 研究開発項目④における計測実施内容。

- ・超ハイブリッドならではの特徴を示すもの
- ・計測、解析に特殊な装置や専門的な知識が必要なもので、かつそれらの基盤を九州大学や産総研が既に保有している項目（九州大学、産総研が有する技術シーズ）を考慮した。

これらの点に留意し、材料開発や基盤研究を担う研究開発項目①～③のグループと協議を重ね、最終的に九州大学がTEMを活用した微細構造の直接観察と三次元計測を、産総研が陽電子消滅法によるサブナノ空孔の状態計測、固体 NMR による粒子一修飾基の結合状態計測、光電子顕微鏡や顕微ラマン分光などによるマイクロ・マクロレベルでの材料構造のゆらぎ計測を担当することとなった（図 2.4.1-1）。また、本研究項目で計測されるデータと、研究開発項目①～③で実施される材料評価結果や材料創製時のプロセス条件などを統合的に解析するため、ナノレベルからマイクロ・マクロレベルに至る材料構造のゆらぎデータを統合し、計測手段のない領域の構造を推定する手法、異種データを統合的に取り扱う手法を開発して、最終的には多変量解析により計測情報と材料機能・特性との相関を求める材料機能インフォマティクスの開発に取り組む。

## 2.4.2 実施計画、内容

本研究開発項目では、機能発現因子となる可能性のある材料構造や物性等の計測・解析、及びデータの統合解析（材料機能インフォマティクス）を実施する。材料構造・物性の計測・解析においては、材料構造設計やプロセス開発で必要となる計測内容で、かつ九州大学、産総研が既に有している計測装置や技術を用いることを基本としているが（図 2.4.1-1）、超ハイブリッド材料に適用するにあたり、あるいは材料開発が進展するに従って、いくつかの改良、高度化、計測効率の向上などを実施する必要が生

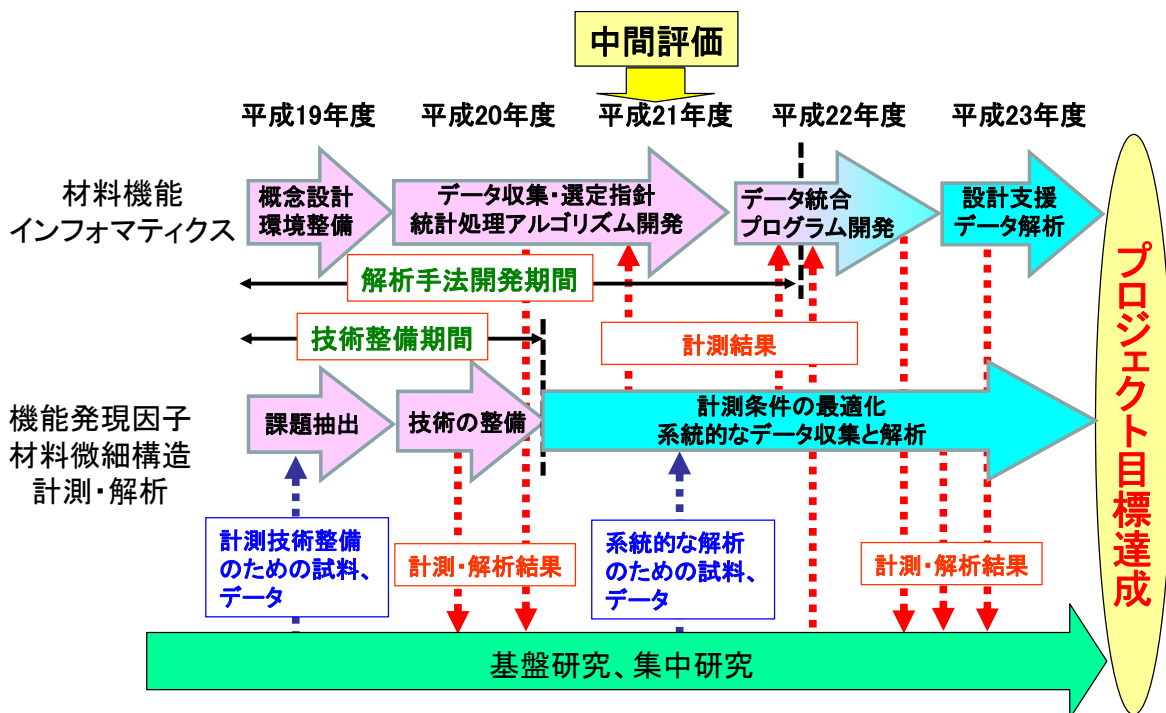


図 2.4.2-1 研究開発の流れ。



じる。このため、プロジェクト開始当初の2年間は集中研究、基盤技術開発グループ（研究開発項目①～③）と密な協議を行い、それらグループの開発過程で作られる試作材の計測とその結果のプロジェクト内へのフィードバックを通じた課題抽出、および技術整備を中心に進めている。一方、データの統合解析については全く新たな取り組みであるため、初年度に概念設計と異種データ取扱のための環境整備などを行い、その後2年程度で統計処理アルゴリズムやデータ統合プログラムの開発を行う予定である（図 2.4.2-1 参照）。以上に加えて、特許情報など内外の超ハイブリッド材料関係開発動向の調査・分析に JCII と共同で取り組んでおり、その結果をプロジェクト内に提供することにより、運営、開発方針策定に寄与している。

基本計画には本研究開発項目の中間目標は定められていないが、プロジェクト内での協議に基づき、計測技術の準備と解析技術の基礎部分の開発をほぼ終え、前半の材料開発に寄与する情報をプロジェクト内に供給することを中間地点での目標とする。

### **2.4.3 プロジェクト試作材の計測・解析**

#### **2.4.3.1 電気・電子材料**

##### **2.4.3.1.1 表面修飾状態の計測・解析結果**

高分解能 TEM によりナノ粒子の表面修飾状態を観察し、その結果から超ハイブリッド法により作製した BN ナノ粒子に対し、どの修飾基を用いることが有効であるか、またどのように存在しているか等を、修飾基を変え比較することにより解明した。

##### **2.4.3.1.2 サブナノ空孔の計測・解析結果**

BN 粒子の分散した熱伝導シートについて、エネルギー可変陽電子寿命測定により、熱伝導シートのサブナノ空孔の深さ分布を調べた。この熱伝導シートの BN 粒子は、表面修飾はしていない。陽電子の入射エネルギーが 1keV, 2keV, 3keV の陽電子寿命スペクトルを調べた。ゼロ近傍の寿命の短い成分と長寿命成分が観測された。この長寿命成分は熱伝導シートのマトリクス樹脂内の空孔（主に高分子鎖の間の隙間）で消滅した成分と推測され、低エネルギーほど長寿命成分の寿命が長くなっている。陽電子の入射深さも示しているが、100nm 程度の領域まで変化していて、それより深い領域は一定の値になる。この長寿命成分の変化は、空孔を球と仮定した場合、直径が約 0.7nm から約 0.5nm まで変化することに対応する。ポリスチレン等の高分子フィルムでも同様に表面付近で陽電子寿命が長くなるものがあるが、10nm 程度の深さでほぼ一定になり、それに比べるとこの BN 熱伝導シートは 10 倍以上深い部分まで変化している。サブナノ空孔は、熱伝導率、誘電率、機械的強度など様々な物理パラメータに関係すると考えられるが、本試料の場合特に熱伝導率が重要で、この熱伝導シートは、表面付近の空隙が大きく熱伝導率が内部に比べて悪いと推測される。

#### **2.4.3.2 光学材料**

##### **2.4.3.2.1 表面修飾状態の計測・解析結果**

ナノ粒子をマトリクス中に均一に分散するためには、マトリクスと相溶性の高い化学種でナノ粒子表面を修飾することが重要である。ナノ粒子をマトリクス中に

分散する過程において表面修飾剤がナノ粒子から離脱することのないように、表面修飾剤はナノ粒子表面に共有結合で強固に結合している必要がある。ナノ粒子の表面修飾が期待しているようにできているかどうかを調べるために、ナノ粒子への表面修飾剤の結合状態を分子レベルで観測することが重要となる。そこで、まず高分解能 TEM により超ナノハイブリッド法により作製した  $\text{TiO}_2$  ナノ粒子にどのように修飾基が存在しているか、またその影響がどのように粒子形状や粒子サイズに影響を及ぼしているか等を修飾前後のナノ粒子を比較することにより解明した。表面修飾を行った場合、粒径ならびに粒子形状を制御することが可能となり、かつ粒子間距離を保ちながら存在することが判明した。特に表面修飾を行った結果、 $\text{TiO}_2$  ナノ粒子が立方体状となったことがわかる。また、高分解能 TEM 観察を行うことにより、修飾材由来の層状相が  $\text{TiO}_2$  ナノ粒子を被覆している様子が判明した。この被覆が粒子間隔を制御していると考えられる。

次に、核磁気共鳴 (NMR) 法により表面修飾状態の解析を行った。NMR は、化学種の構造を分子レベルで観測するために非常に有力な手法であり、他に代えうる手法がない。固体 NMR 法では、固体試料のまま測定して、化学種の構造を調べることができる。

開発試料の計測を始める準備として、まず表面修飾剤であるデシルホスホン酸 (DPA) の固体 NMR 測定を行った。固体状態で測定した  $^{31}\text{P}$  MAS NMR スペクトルを示す。高分解能を得るために、試料をマジック角回転 (MAS) して測定を行った。DPA は、31.7、31.1 ppm にシャープなシグナルを示した。分子構造から  $\text{C-P(=O)(OH)}_2$  に帰属される。線幅が狭いことは結晶であることを示し、結晶学的に異なる 2 つの P サイトが存在することを示した。この結果から、デシルホスホン酸 (DPA) による表面修飾状態を調べるために、 $^{31}\text{P}$  MAS NMR スペクトル測定が有望であることが示された。

開発試料の NMR スペクトルを解釈するための基礎データとするために、チタニア (アナターゼ) のナノ粒子の表面をデシルホスホン酸で修飾したモデル試料を有機化学的手法で作製し、固体 NMR スペクトルを観測した。

DPA/ $\text{TiO}_2$  (産総研製) では、28.2 ppm の鋭いピークと、40 ppm から 20 ppm に広がるブロードなシグナルが観測された。さらに、9.2 ppm と 7.3 ppm の位置に 2 本のシャープなピークが観測された。DPA のシグナルに比べて全体として低周波数側 (スペクトルの右側方向) にシフトしており、P-O-Ti の結合の生成が示唆された。低周波数側へのシフト量が P-O-Ti 結合の数と相関していることが既に報告されている。 $^{31}\text{P}$  化学シフトに関する検討から、40 ppm から 20 ppm の範囲のシグナルはチタニアと 1 ~ 2 本の結合を持つリン酸基 (1 座配位、2 座配位)、9.2 ppm と 7.3 ppm のシャープなシグナルは 3 本の結合を持つリン酸基 (3 座配位) と推測された。

以上の準備の後、プロジェクト内で超臨界法により合成されたナノ粒子の表面修飾状態を固体 NMR 法で解析した。チタニア (アナターゼ) のナノ粒子の表面をデシルホスホン酸で修飾した試料 (DPA/ $\text{TiO}_2$ ) であり、計測技術の整備で用いたモデル試料と同じ構成要素から成る系である。超臨界法で合成された試料では、9.2 ppm にのみシャープなシグナルが観測された。モデル試料において行った検討を基にして、3 本の P-O-Ti 結合を持つリン酸基 (3 座配位) に帰属された。超臨界法では通常の有機化学的合成法と異なり、非常に均一性が高く、かつ強固な化学結合が生成されることが示された。

また、表面修飾状態を観測するために固体 NMR 法が有効であることも示された。

今後は、チタニアーデシルホスホン酸系以外の開発材料に対しても固体 NMR 法を適用していく計画である。並行して、似構造を持つモデル系についても固体 NMR 測定を行い、開発試料のスペクトルの解釈に役立てるつもりである。

#### 2. 4. 3. 2. 2 サブナノ空孔の計測・解析結果

高屈折率の実現を目標として、集中研で開発されている超ハイブリッド光学材料の陽電子寿命測定を行い、測定手法の有効性を確認するとともに、材料に適した測定条件について検討した。

対象とした材料は、無機親和性高分子分散材中に分散させた高屈折率金属酸化物微粒子（ジルコニア）である。微粒子を分散した材料は Si 基板上にスピコートして薄膜状にした後、適当な大きさに切って、陽電子寿命測定を行った。本材料に関しては、高屈折率の実現のためにナノ粒子（金属酸化物微粒子）を凝集させることなく、均一に高分子中に分散させることが課題であり、そのために、超臨界法によるナノ粒子表面を修飾する方法の研究開発が行われている。本報告で対象とした材料の場合、ナノ粒子の濃度を増加させていくと屈折率の増加が期待されるが、ナノ粒子濃度が高い（80wt%以上）試料では、これに反して屈折率の増加が起きない屈折率異常が見られた。この原因を調べるため、ナノ粒子濃度とナノ粒子の調製方法を変えた複数の試料を用意し、それぞれの陽電子寿命測定の結果を比較した。

陽電子寿命測定により得られたジルコニアナノ粒子分散ハイブリッド試料の陽電子寿命スペクトルの解析を行ったところ、2成分または3成分の陽電子寿命が観測された。0.34~0.37nsの値を持つ第一成分（ $\tau_1$ ）は、主として陽電子単体で消滅する成分である。ジルコニア結晶内での陽電子消滅寿命は0.2ns以下だがその成分は顕著ではない。欠陥が無い結晶中では陽電子は100ナノメートル以上拡散できるため、陽電子がジルコニア粒子の中に入っても、拡散によってジルコニア粒子の表面あるいはマトリクス樹脂に移動して消滅したと考えられる。1.6~2.4nsの値を持つ第二成分（ $\tau_2$ ）は、ポジトロニウム（陽電子と電子の束縛状態）に対応する寿命成分で、主に樹脂の高分子鎖のサブナノサイズの隙間（自由体積）を主に反映していると考えられる。9ns以上の値を持ち、試料によっては観測されないこともある第三成分（ $\tau_3$ ）は、マトリクス樹脂の高分子鎖の隙間よりも大きなナノ空隙のポジトロニウムの成分と考えられる。この寿命から空隙の形状を球形と仮定して、観測されたポジトロニウムの成分に対応する空隙の大きさを計算する事が可能で、9nsの寿命は1.3nmの直径、30nsの寿命は約2nmの直径の空隙に相当する。60wt%のスペクトルの場合、ピークから30nsec以降がほとんどバックグラウンドのみの平坦なスペクトルとなっているのに対し、90wt%の場合には、100nsec付近まで長く裾を引いたスペクトルとなった。

当初、60nsec程度の時間範囲で陽電子寿命スペクトルを測定したが、いくつかの試料で観測された20から30nsec程度の陽電子寿命を精度良く測定することは困難であることが判明したため、寿命スペクトルの測定範囲を拡げ、130nsec程度まで時間範囲を拡げて測定を行い、より正確な寿命値の評価を実現した。

#### 2. 4. 3. 2. 3 粒子分散状態の計測・解析結果

光電子顕微鏡(Photo Electron Emission Microscope: PEEM)によりチタニア超ハイブリッド部材等の観察を行い、本方法の有用性について考察した。重水素ランプからの真空紫外線を励起光源として PEEM により  $\text{TiO}_2$  ナノ粒子 (粒径 10nm) をポリマーに分散させてシリコン基板上にスピコートした試料の表面観察を行った。昨年度観察した  $\text{TiO}_2$  の濃度 10vol%, 5.3vol%, 2.7vol% と変えた試料の PEEM 像から直径数  $\mu\text{m}$  ~ 20  $\mu\text{m}$  程度の暗い円形状のものが分布している様子が観察されている。また、 $\text{TiO}_2$  濃度 5.3vol% の試料に対し、アニール温度および時間を 1) 135°C、10 時間、2) 120°C、15 時間、3) 120°C、20 時間の 3 種類の異なる熱処理を行った後の PEEM 像を取得した。アニール処理を行うことで円形状構造の領域面積を減少させることができ、また処理条件を最適化することでほぼ消滅できることが分かった。この構造は  $\text{TiO}_2$  の濃度と明らかな相関を示していることから、 $\text{TiO}_2$  ナノ粒子が存在している領域すなわち  $\text{TiO}_2$  凝集領域と推測するのが妥当と思われるが、その確証を得るためには X 線励起 PEEM (X-PEEM) による観察が必要である。励起光源として X 線を用いることで、元素ごとに内殻電子の励起エネルギーが異なることを利用し、元素分布のマッピングおよび化学シフトによる吸収端のずれから化学状態分析も可能となる。PEEM に電子エネルギーフィルターを備えると、エネルギーを固定した X 線を照射し、特定の運動エネルギーをもつ光電子を画像化することで表面の化学マッピングが行える。一方光学顕微鏡ではいずれの試料でも何の構造も観察されず、試料全面に涉って一様である。したがって PEEM で観察されている構造は表面トポグラフィをイメージングしているのではなく、物質分布や化学状態の違いのコントラスト像が得られていると考えられる。今後、励起光源として X 線を用い、X-PEEM により上記  $\text{TiO}_2$  試料の化学マッピングを行う予定である。

## 2.4.4 計測技術の整備

### 2.4.4.1 化学結合状態分析技術の整備

励起光源として X 線を用いることで、元素ごとに内殻電子の励起エネルギーが異なることを利用し、元素分布のマッピングおよび化学シフトによる吸収端のずれから化学状態分析が可能となる。PEEM に電子エネルギーフィルターを備えると、エネルギーを固

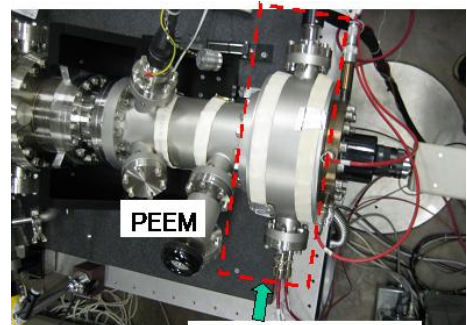


図 2.4.4.1 - 1 PEEM エネルギーフィルター

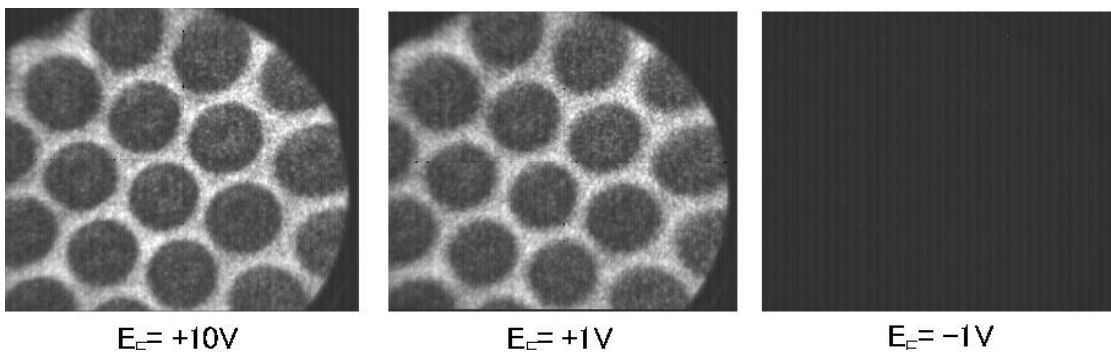


図 2.4.4.1-2 エネルギーフィルターのバイアス  $E_f$  を変化させた時の PEEM 像。

定した X 線を照射し、特定の運動エネルギー

をもつ光電子を画像化することで表面の化学マッピングが行える。図 2.4.4.1-1 に Staib 社製 PEEM 装置 (型式 PM-350-10) に導入した高エネルギー電子透過型のイメージングエネルギーフィルターを示す。試料表面から放出された光電子は、10keV まで加速された後、PEEM の電子レンズを通過後、0eV 付近まで減速させ、イメージングエネルギーフィルターに入射する。当フィルターは電圧  $E_F$  のバイアスがかかったメッシュ電極で構成されており、電極電圧  $E_F$  より高エネルギーの光電子のみメッシュ電極を通過でき、通過した光電子をマイクロチャネルプレート (MCP) 上で結像させ、CCD カメラで映像化する。これにより、光電子エネルギー 0 - 150eV のエネルギー分析が可能である。

イメージングエネルギーフィルターの性能を評価するため紫外光源 (水銀ランプ) を用いて図 2.4.4.1-2 に示す  $12\mu\text{m}$  ピッチで並んでいる円形パターン構造の観察を行ない、これらの測定から空間分解能が  $1\mu\text{m}$  以下でエネルギー分解能  $0.5\text{eV}$  以下であることを確認している。また、エネルギーフィルターのメッシュ電極の電圧を  $E_F = +10\text{V}$ ,  $+1\text{V}$ ,  $-1\text{V}$  に設定した時の PEEM 像で  $E_F = +1\text{V}$  以上で見えていた像が、 $E_F = -1\text{V}$  では完全に見えなくなり、 $1\text{eV}$  以下の光電子のエネルギー幅が評価できることが分かる。また、種々の化合物が含まれている試料において Si 元素からの光電子に絞って検出したイメージング測定例を図 2.4.4.1-3 に示す。次に、X線吸収分光法による  $\text{TiO}_2$  ナノ粒子の分散状態評価について述べる。励起光源としてX線を用いることで、元素ごとに内殻電子の励起エネルギーが異なることを利用し、元素分布のマッピングをすることが可能であり、これが X-PEEM である。放射光のようにエネルギー可変な X線光源であれば、X線エネルギーを特定元素の吸収端付近に合わせることで、その元素から放出す

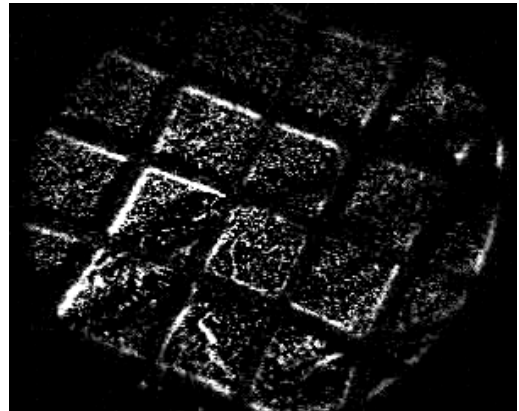


図 2.4.4.1-3

Si からの光電子検出に絞った PEEM 像の

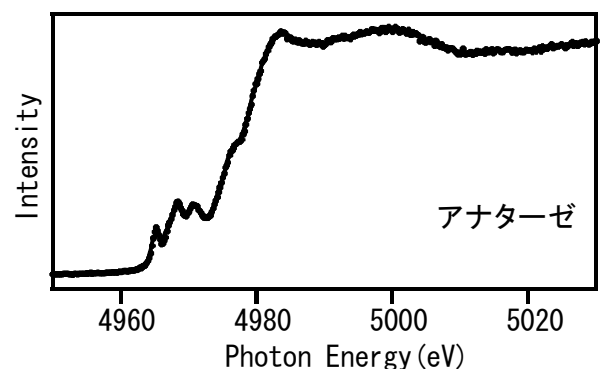
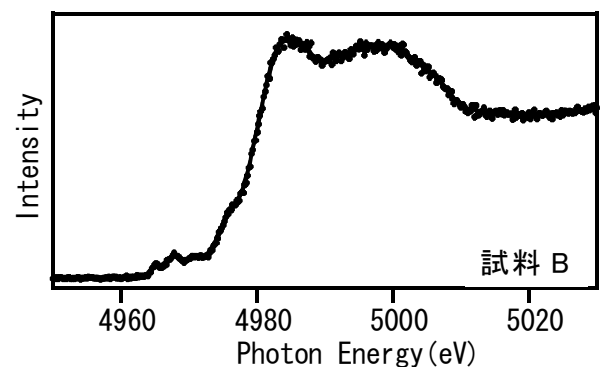
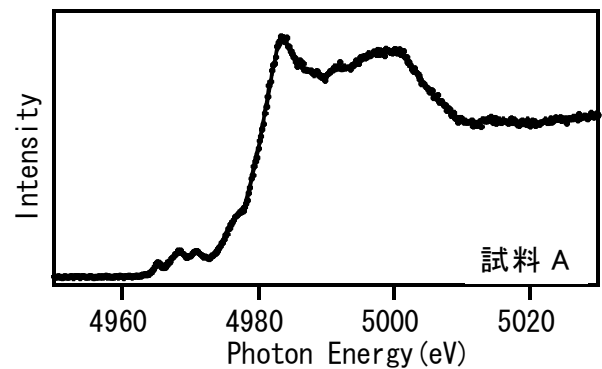


図 2.4.4.1-4 酸化チタンナノ粒子の XANES スペクトル。

る光電子のイメージングが行え、その元素の存在する領域が明るく現れ、元素の分布を知ることが出来る。また、元素マッピングのみではなく、化学シフトによる吸収端のずれから化学状態分析も可能である。一方 PEEM に電子エネルギーフィルターを備えると、エネルギーを固定した X 線を照射し、特定の運動エネルギーをもつ光電子により画像化することによっても表面の化学マッピングが出来る。これは光電子のエネルギーを分析して化学種を決定する ESCA とその 2 次元イメージを得る PEEM を合体させたものである。確かなことを述べるためには X-PEEM による観察結果を待たなければならないが、今のところ、当試料では  $\text{TiO}_2$  ナノ粒子は母剤に一樣に分散しているのではなく、 $10\ \mu\text{m}$  程度に凝集して存在しているものと推論している。X-PEEM と考える。具体的に化学結合状態を測定した例を以下に述べる。X 線吸収スペクトルの吸収端近傍を XANES (X-ray Absorption Near Edge Structure) と呼び、内殻準位から空準位への吸収による微細構造が現れる。これらの構造を解析することにより、物質中の特定元素の電子状態、局所構造、化学状態に関する情報を得ることが出来る。本研究では、平均粒径  $20\text{nm}$  の  $\text{TiO}_2$  を高分子中に分散 ( $10$  体積%) させてスピコートした薄膜試料 (試料 A) と平均粒径  $10\text{nm}$  のアナターゼ型  $\text{TiO}_2$  をデシルホスホン酸修飾した粉末試料 (試料 B) について、Ti  $K\alpha$  蛍光 X 線収量法を用いた Ti  $K$  吸収端 XANES 測定によりナノ粒子の分散状態の評価を行った。測定は高エネルギー加速器研究機構放射光実験施設 BL-27B において、日本原子力開発機構の蛍光 X 線検出器を使用した<sup>1)</sup>。また、比較のためにアナターゼ型  $\text{TiO}_2$  粉末試料の測定も合わせて行った。これらの結果を図 2.4.4.1-4 に示す。試料 A はアナターゼ型  $\text{TiO}_2$  に特徴的な  $\sim 4983\text{eV}$  に鋭いピークをもち、Ti-O-Ti ネットワーク結合の存在を示唆した。一方、試料 B は構造の歪みによる  $\sim 4983\text{eV}$  のピーク強度の減少と広がり呈し、アナターゼ型  $\text{TiO}_2$  ナノ粒子に似たスペクトル形状を示した。また、 $\sim 4975\text{eV}$  のピークは、粒径が小さくなると減少することが報告されており、試料 B ではこのピークが残っていることから、数 nm より大きな粒径で分散している可能性を示唆した。 $4960\text{-}4973\text{eV}$  のスペクトル形状もアナターゼ型  $\text{TiO}_2$  とは異なっており、アモルファス構造も混ざっていると考えられる。アモルファス構造の場合  $\sim 4975\text{eV}$  のピークが消失することから、試料 B はアナターゼ型ナノ粒子であるが表面がアモルファス化されていると推察される。一般に、無機粒子である  $\text{TiO}_2$  は 1 次粒径が数  $10\text{nm}$  であっても、市販品の乾燥処理された粉末においては、数  $\mu\text{m}$  の凝集粒子になっていることが知られており、試料 A ではこれを支持する結果となった。また、有機修飾された試料 B ではナノ粒子の分散が確認できた。

以上の手法を励起光源として X 線を用いることで、元素ごとに内殻電子の励起エネルギーが異なることを利用し、PEEM に適用することにより元素分布のマッピングをすることができ、ミクロ階層での化学結合状態 分布計測を可能となる。放射光のようにエネルギー可変な X 線光源であれば、X 線エネルギーを特定元素の吸収端付近に合わせることで、その元素から放出する光電子のイメージングが行え、その元素の存在する領域が明るく現れ、元素の分布を知ることが出来る。また、元素マッピングのみではなく、化学シフトによる吸収端のずれから化学状態分析も可能である。

## 2. 4. 4. 2 三次元計測の実現

### 2. 4. 4. 2. 1 イオンビームによる表面加工

イオンビームを用いた分析法の一つである二次イオン質量分析法 (Secondary Ion Mass Spectrometry: SIMS) では、試料表面にイオンビームを照射し、その衝撃で発生する二次イオンを質量分析することにより、試料構成元素、組成、化学構造の同定ならびに濃度測定を行う分析法である。スパッタリング現象を用

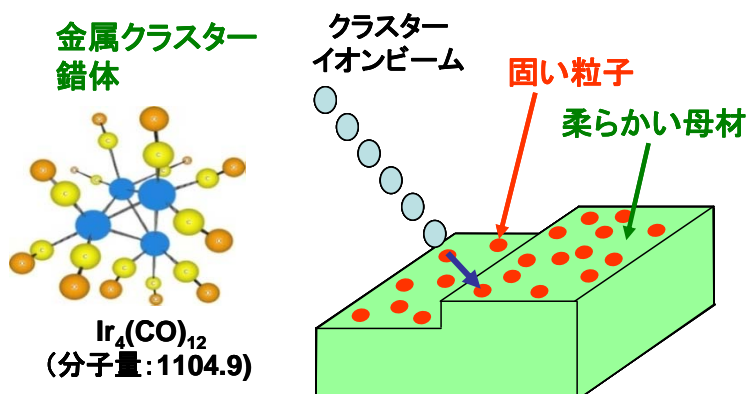


図 2. 4. 4. 2-1 クラスターイオンによる無機粒子有機材料の同時・均質除去技術。

いるため、表面および深さ方向も含めた 3 次元の情報が高感度 (ppm~ppb) で可能であり、有機材料ならびに無機材料の表面分析や深さ方向分析等において非常に有力な分析手法である。しかしながら、通常、SIMS の一次イオンビームに用いられる  $\text{Cs}^+$  や  $\text{O}_2^+$  などのイオンビームでは、超ハイブリッド材料で予想される二次イオン生成効率の低い材料の均質スパッタ、ひいては高感度分析や高精度な深さ方向濃度分析を実現することは難しい。この問題を解決する方法の一つは、多数の原子から構成されるクラスターイオンビームを SIMS 用一次イオンビームとして用いることである。クラスターイオンは試料表面に衝突すると分裂し、その運動エネルギーはクラスターを構成していた各原子に分配されるため各原子あたりの衝突エネルギーは大幅に小さくなり、高いスパッタ効率を維持した均質なスパッタが可能となり、その結果、低ダメージな高精度かつ高感度の SIMS 分析が可能となる。従って、このイオンビームを用いることにより、試料表面の原子層レベルの均一なスパッタが可能となるため、PEEM をはじめとする表面分析手法の際の表面処理や深さ方向分析の有力なツールとなることが期待される。

産総研では、応用例のある  $\text{Au}_3^+$  や  $\text{C}_{60}^+$  よりも分子量が大きいながらも安定で、化合物群をなし種類の豊富な「金属クラスター錯体」という巨大分子を用いた新しいタイプの小型イオン源を提案し、開発を行ってきた。本研究課題では、図 2. 4. 4. 2-1 に示すように、この金属クラスター錯体イオンのスパッタ特性を活かして、SIMS を無機・有機超ハイブリッド材料の構造計測に適用すべく、イオンビーム源の改良や、無機材料、有機材料の均質表面スパッタにおける金属クラスター錯体イオンビームの優位性を示した。

#### i) 金属クラスター錯体イオンビームの先鋭化

SIMS 分析における面分解能は、一次イオンビーム径の大きさによって制限される。従って、面分解能を向上させるためにはイオンビーム径の縮小が必要となる。そこで、金属クラスター錯体イオン源を改造し、ワーキング距離を電子レンズの焦点付近まで

延長することにより、イオンビーム径の縮小を試みた。図 2.4.4.2-2 に、改造前と改造後のイオンビームのプロファイルを示す。図から明らかなように、改造前のイオンビームの半値幅はであった改造によりイオンビームの半値幅は約  $450\ \mu\text{m}$  から約  $150\ \mu\text{m}$  に縮小され、イオンビームが先鋭化されたことがわかる。

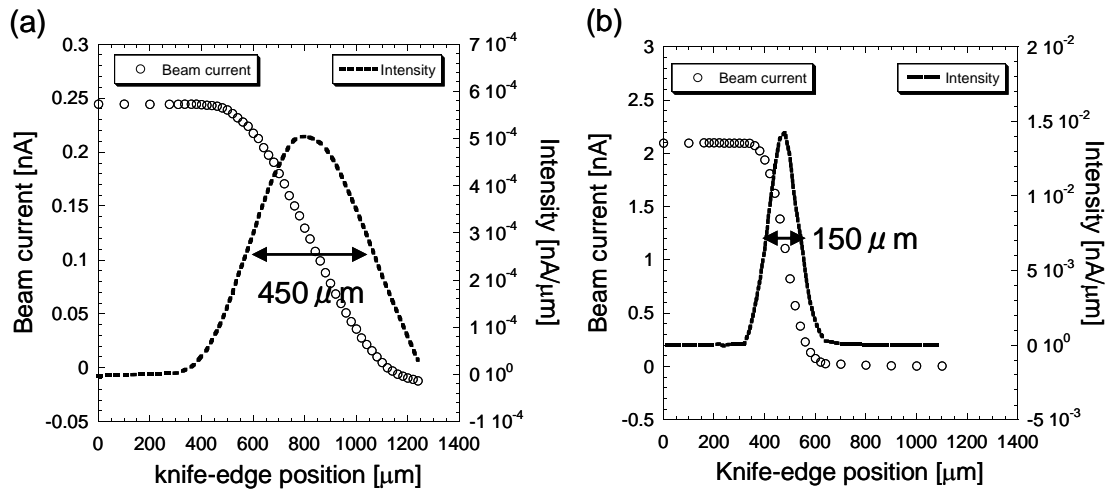


図 2.4.4.2-2 金属クラスター錯体イオン源の (a) 改造前と (b) 改造後のイオンビームのプロファイル。

### ii) クラスターイオンによる均質表面除去

改造後の金属クラスター錯体イオン源を既存の SIMS 装置（四重極質量分析器付き）に設置し、無機材料の SIMS 深さ方向濃度分析を実施した。分析試料としては、ホウ素の単原子層を深さ方向に 8 層有するシリコン基板を用いた。図 2.4.4.2-3 に分析試料の概念図と SIMS 分析により得られた深さ方向濃度プロファイルの例を示す。SIMS 分析における各種条件（イオンビームの入射エネルギーや入射角度等）を最適化することにより、ビームエネルギー  $5\text{keV}$ ・入射角度  $45^\circ$  という分析条件において、均質な表面ス

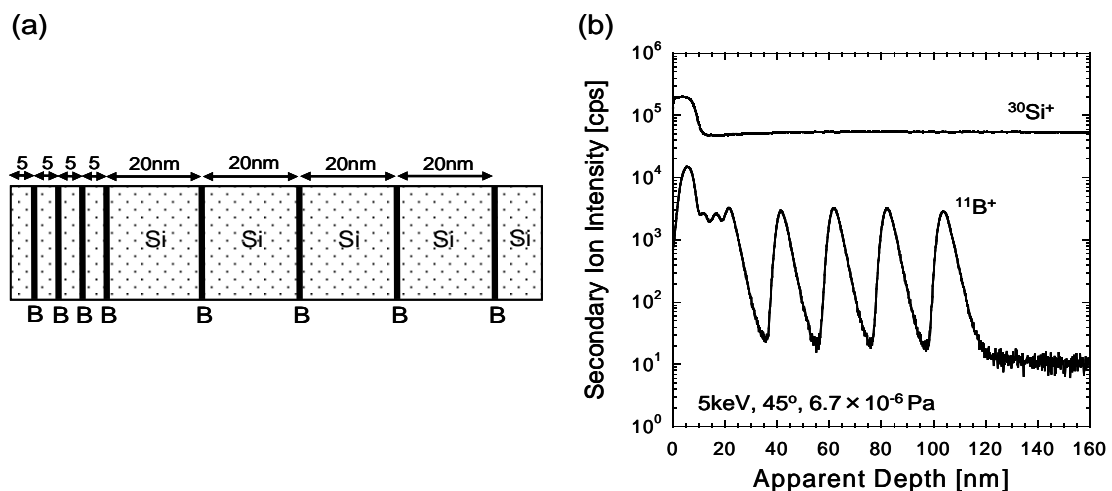


図 2.4.4.2-3 (a)分析試料の断面図。(b)深さ方向の濃度プロファイルの例。パッタが実現し、高い精度の深さ分解能（1nm 未満）が得られることが確認できた。



### iii) 有機材料の均質表面加工

金属クラスター錯体イオンビームの有機物に対する有用性も明らかにするため、有機材料に対する SIMS 分析も行った。SIMS 実験では、シリコン基板上に作成した有機物 (poly(methyl methacrylate) : ポリメチルメタクリレート) の極薄膜を分析試料として用いた。本実験では、ポリメチルメタクリレートを厚さ約 5 nm に極薄膜化することで、チャージアップの問題を抑制した。具体的には、トルエンで希釈した 0.1% のポリメチルメタクリレート溶液をシリコン基板上に滴下し、スピコート法 (5,000 rpm、120 秒) により薄膜化させた。作成した薄膜試料は、90°C で 5 分間乾燥させ、SIMS 分析に用いた。なお、乾燥後の薄膜試料をエリプソメーターで測定し、膜厚が約 5 nm であることを確認している。SIMS 分析では、金属クラスター錯体イオンビームの入射角は 45° とし、ビームエネルギーをパラメータとして、分析試料から放出される二次イオンのマススペクトルを調べた。図 2.4.4.2-4~図 2.4.4.2-6 は SIMS 分析によって得られたポリメチルメタクリレートのマススペクトルの結果である。

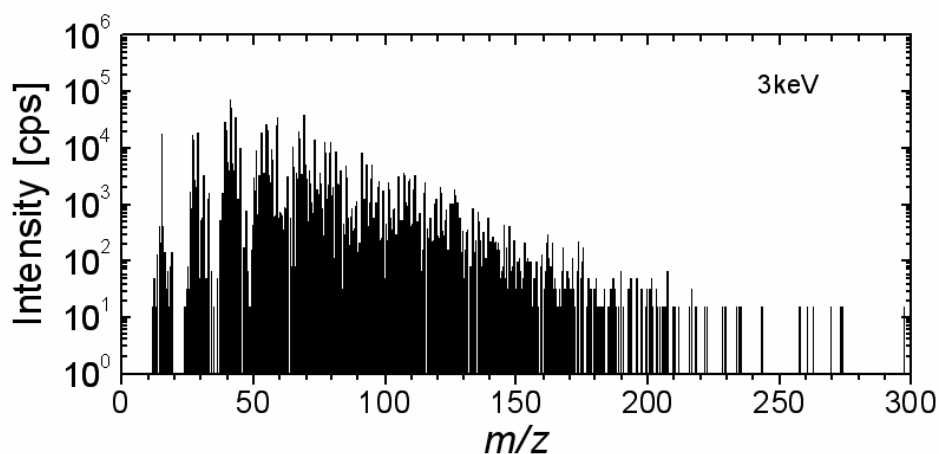


図 2.4.4.2-4 金属クラスター錯体イオンビームを 3keV  
で照射した場合のマススペクトル

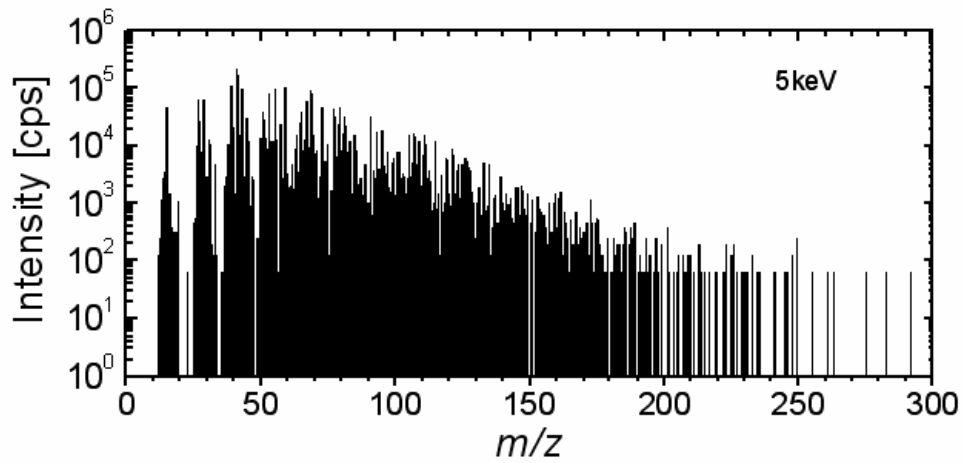


図 2.4.4.2-5 金属クラスター錯体イオンビームを 5keV で照射した場合のマススペクトル。

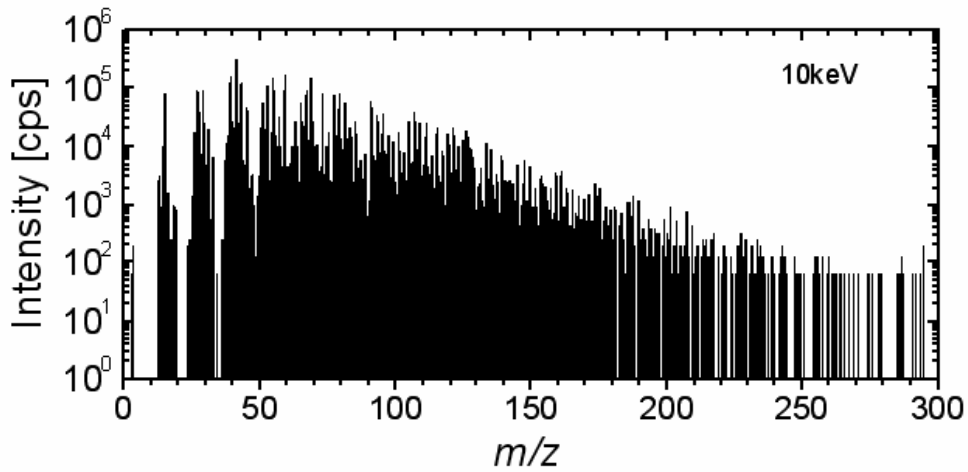


図 2.4.4.2-6 金属クラスター錯体イオンビームを 10keV で照射した場合のマススペクトル。

本試料は $-\text{CH}_2(\text{CH}_3)(\text{COOCH}_3)\text{C}-$ をユニットとする高分子であり、低侵襲なイオンビームスパッタによっても、無数のピークが生じるが、入射イオンビームのエネルギー上昇に伴い、得られる二次イオン強度が増大することや高質量 ( $m/z$ ) 域の二次イオン強度が増大することがわかった。これらの結果は、厚さ 5 nm の極薄有機薄膜が均質にスパッタされたことを裏付けるものであり、有機物等の SIMS 分析においても、金属クラスター錯体イオンビームが適用可能であることが確かめられた。

以上のことから、本課題で開発した金属クラスター錯体イオンビームを用いると、無機材料と有機材料の両者に対して均一なスパッタ加工が実現可能なことが示されたので、PEEM 等の表面分析と組み合わせることにより、高精度な 3 次元分析への展開を進めることができる。

#### 2. 4. 4. 2. 2 陽電子消滅法の三次元への拡張

本プロジェクトでは、超ハイブリッド試料に対応した  $10\ \mu\text{m}$  以上の深さの測定を可能にする専用ビームラインを開発する計画であるが、平成 20 年度までに専用ビームラインの整備を行うとともに、陽電子寿命測定で安定に測定できる範囲を拡張し、深さ  $5\ \mu\text{m}$  以上までの測定を可能にした。専用ビームラインの整備では、図 2. 4. 4. 2-7 の電子加速器から分岐して、陽電子コンバーターに至る部分（点線内）を中心に開発を進めた。

陽電子寿命測定の深さ方向の拡張は、高電圧印加部の改良により試料部に高電圧を安定に印加できるようにして、陽電子の試料への入射エネルギーを 25keV まで可変できるようにした。これによって、比重が  $1.2\text{g}/\text{cm}^3$  の場合、図 2. 4. 4. 2-8 に示すように陽電子の平均入射深さが  $5\ \mu\text{m}$  超までの陽電子の寿命測定が可能になった。また、試料の作成条件によっては、30nsec 程度の長い陽電子寿命を示す試料があることが分かってきた。通常 50nsec 程度の時間範囲で陽電子寿命スペクトルを測定しているが、これでは精度が不十分な場合があるため、スペクトルの時間範囲を 100nsec 以上に広げた

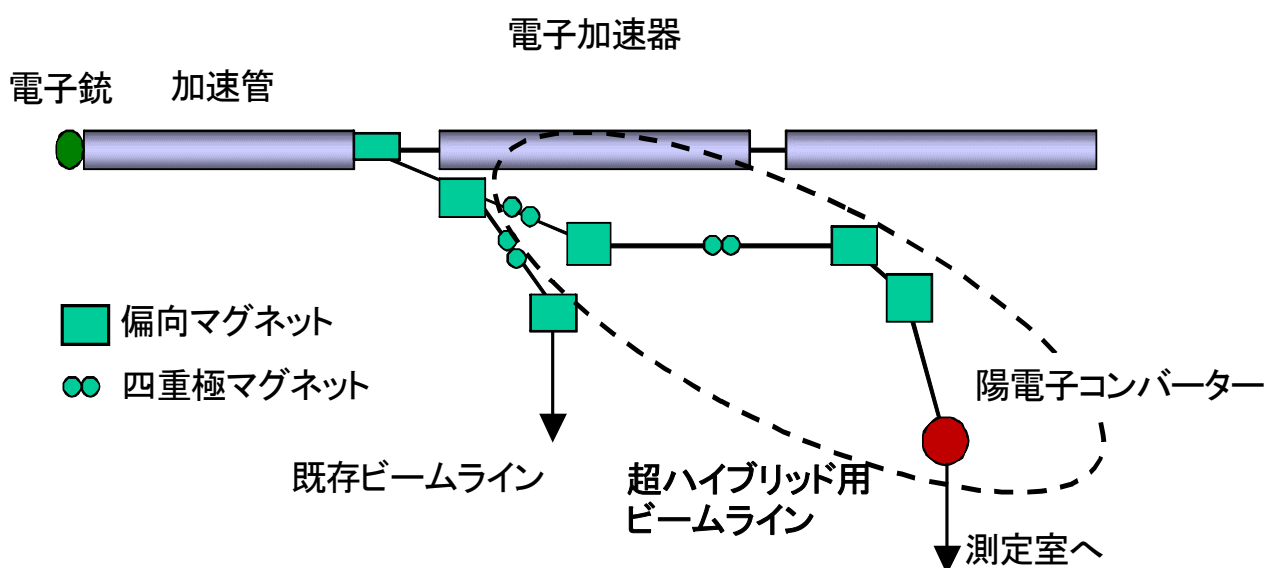


図 2. 4. 4. 2-7 超ハイブリッド専用ビームラインの概略図。

測定した場合と、通常の測定を行った場合の比較検討を行った。

### 2.4.5 統合解析手法の開発

超ハイブリッド材料では、マトリクス中におけるナノ粒子や空孔の分散・配向性や、組成、密度、化学状態の空間ゆらぎ（これらを不均質性と呼ぶ）が、巨視的には平均化され消失してしまう一方で、実際にはこれらが機能に大きく関わる場合があることが予想される。このような材料の場合、単一スケールの局所的な測定に基づく平均的記述は機能の詳細を捉えることができないことから最適設計に不向きであり、異なるアプローチが必要となる。即ち、多階層の空間スケール・分解能で捉えた空間情報をもとに計測データ（例：ケミカルイメージデータ）を元に多角的に解析し、機能と不均質性との関係をミクロスケールからマクロスケールまで具体的に記述し全体像を把握することが必要且つ有効と考えられる。そのため本研究開発では、2.4.2項の技術開発から得られる空間情報をもとに異種多元的な計測データの統合および解析を行う。さらに、これらの結果の多変量解析を行って、材料機能と解析結果との相関関係を定量的な経験則として整理し、材料設計にフィードバックする方法およびその方法論（ここでは「材料機能インフォマティクス」と呼ぶ）を開発することにより、超ハイブリッド開発に資することを最終目標とする。

上記のような研究開発の端緒として、単一の空間スケール・分解能で捉えた空間情報をもとに計測データ（例：ケミカルイメージデータ）を解析し、空間ゆらぎの特性を具体的に記述する手法の開発に取り組んだ。ここではまず空間ゆらぎ特性のスケール依存性に着目し、その依存性により材料の特徴付けを行うことを試みることにした。

図2.4.5-1は集中研から提供された光学材料（TiO<sub>2</sub>ハイブリッドポリマー薄膜）を、顕微ラマン分光装置を用いてマッピング測定（条件；対物レンズ倍率100倍；レーザー波長514nm；ステージの移動分解能x-y方向に0.5 μm；51x51=2601ポイント）し、測定点毎にスペクトル中のTiO<sub>2</sub>/ポリマーのピーク強度比  $x$ （組成比に相当）を与えてイメージングしたものである。これを基に、距離  $h$  だけ離間した二点  $\mathbf{r}$  と  $\mathbf{r} + \mathbf{h}$  の間の  $x$  の差、 $z_h = x(\mathbf{r}) - x(\mathbf{r} + \mathbf{h})$  を確率変数とする空間ゆらぎの確率密度分布  $f(z_h)$  の分散  $\sigma_h^2 = \langle z_h^2 \rangle$ 、および（正規化）尖度  $\langle z_h^4 \rangle / \sigma_h^4 - 3$  の  $h$  依存性を示した。（ここで  $\langle y \rangle$  は  $y$  の期待値を意味し、異方性は無いものと仮定。）顕微ラマンの空間分解能はレーザー焦点径程度、実測半値幅見積もりで1 μm以下である（径100 μmの共焦点ピンホール使用）。分散は  $h = 0$  でゼロ、十分大きな  $h$  で一定値を取る（ガウス分布を仮定した場合、2点間で空間相関が無くなる）ため、5 μm付近まで見られる変化は2~3 μm程度の特徴的な空間スケールを持つ何らかの構造が材料中に存在する可能性を

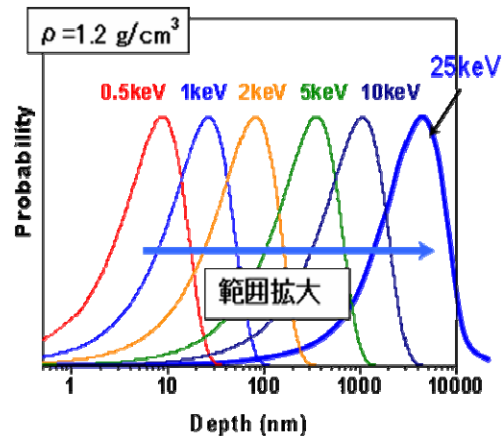


図 2.4.4.2-8 陽電子の入射分布。

示している。尖度の方はガウス性からのずれの定量的な尺度を与える。ゼロならばガウス分布、即ち測定値 $x$ はランダム（無相関で独立）な事象であることを意味する。 $h$ 依存性からは、実際には $18\mu\text{m}$ 程度まで強度分布にガウス性からのずれが存在し、分散で見積もられるよりも大きな空間スケールの空間相関があることを示唆している。（異方性など非定常な構造ゆらぎの存在等が原因と考えられる。）

次に、マッピングデータにおける信号強度の分布波形を高波数成分と低波数成分に分解する多重解像度分解（ウェーブレット変換）と、上記の二点間の信号強度差の二次（分散）および四次モーメント（尖度）の変化を調べる方法とを組み合わせる解析手法を提案し、モデル画像データを用いたテストを行った。図 2.4.5-2 に示すように、本手法により空間構造の特徴とそのゆらぎを同時記述することが可能になった。これにより、材料開発において要求される不均質性解析結果の具体的で詳細な意味づけが可能になると期待される。たとえば、あるマッピングデータの中から、混練条件など大きなスケールでの空間構造に影響する因子に支配されるゆらぎ成分を抽出することも可能になる。

前述のように、超ハイブリッド材料において機能発現機構を明らかにするためには、多階層での構造ゆらぎや化学状態のゆらぎを定量化し、材料の全体像を明らかにすることが必要になる。そのような場合、適用可能な測定手法が、十分な空間分解能や感度を持っているとは限らないことから、統計的な手法で情報を補うことが必要になる。

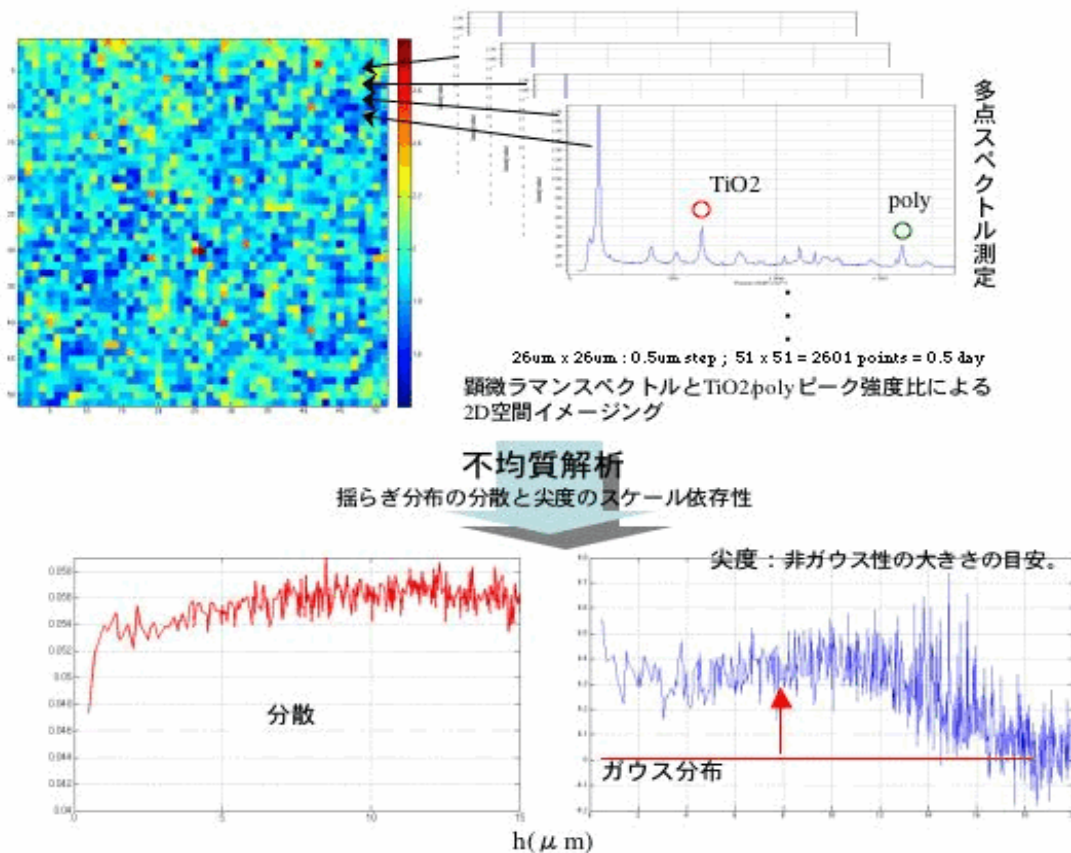


図 2.4.5-1 ラマンマッピングにおける空間相関の解析例。

位置情報を伴うデータの統計解析理論については、地下資源や水脈の分布推定に用いられる空間統計学・地球統計学がよく知られている。本研究開発ではこれらの考え方をを用いて、多階層での構造や化学状態のゆらぎを定量化する手法の開発に取り組むこととした。現在は光学材料（超臨界ジルコニアナノ粒子分散材）を例に地球統計学的

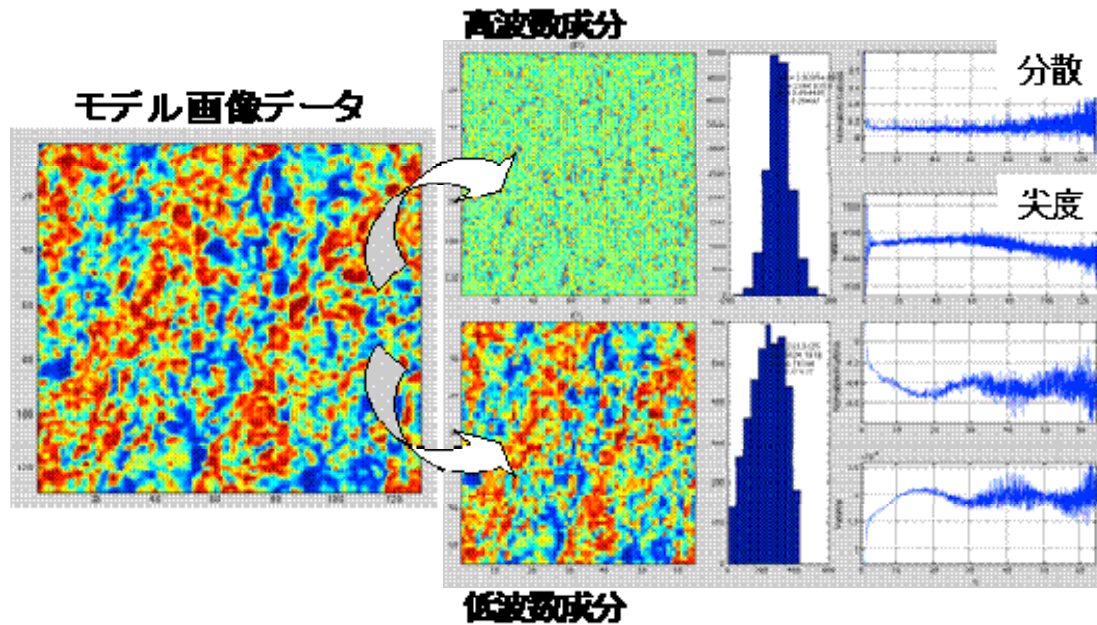


図2.4.5-2 画像データの多重解像度分解と、分解成分の分散および尖度。

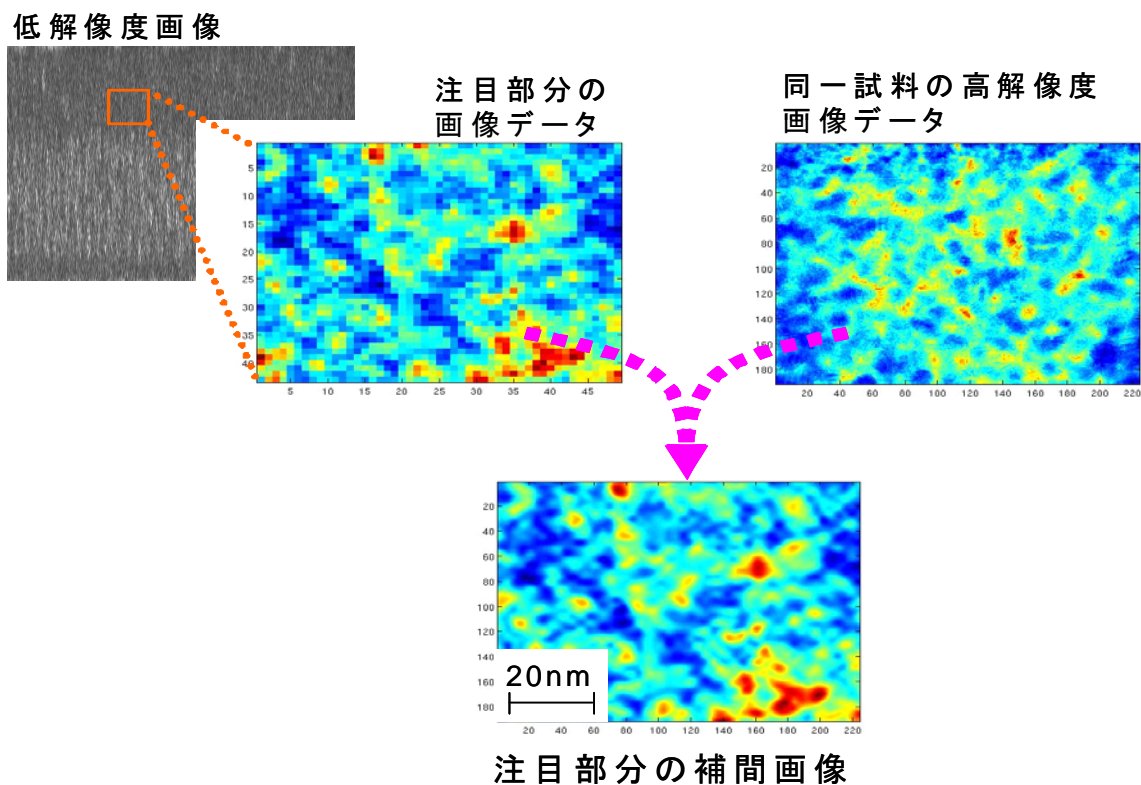


図 2.4.5-3 地球統計学的手法による画像補間。

なデータ内挿手法の適用を試みている。図2.4.5-3はTEM画像に適用した例で、低分解能画像の注目する部分について、同一試料の高分解能画像のデータの補間（内挿）を行ったものである。注目部分の画像データと高分解能画像データの双方において空間相関（バリオグラム）を求め、二つのバリオグラムの相関関係（クロスバリオグラム）を基に、補間画像を算出した。原理的には、この手法により俯瞰的なマッピングデータと局所的なマッピングデータを基に、それらの中間の階層のマッピングデータを推定することができる。

一方、上記のような研究開発には、種々の手法で測定された空間情報をともなうデータを効率よく格納し、測定条件と共に試料作成条件などの情報とを統合して操作性良く管理する計測・解析システム環境が不可欠である。一般に大量のデータを扱う場合には、いかにして効率よくデータを格納・管理するかということが重要となる。材料機能インフォマティクスにおいては、計測機器の設定条件や作動温度などの装置環境の変化、データ形式（数値、画像データ、位置情報、2・3次元測定など）の変更に対しても必要な情報を漏らすことなく効率よく自動的にデータを格納・管理することが必要になる。

これらの環境整備のため、まず既設の顕微ラマン分光装置（HORIBA Jobin Yvon社製HR-800）による計測－解析－解析結果のデータベースへの格納を自動で行うため、同装置の制御とデータ解析を行うWindows環境におけるソフトウェア（LabSpec5）をプログラム（VisualBasicScript）制御するためのスクリプト、TextImageMakerを独自開発した。これにより、図2.4.5-4に示すように、構内ネットワーク（LAN）を介して種々のデータを効率良く大容量ディスクストレージを装備したサーバ（Mac OSX）への保存を可能にすると共に、これらのデータをマルチプラットフォーム対応の商用データベースマネジメントソフトFileMakerSeverおよびFileMakerProで一元管理する環境整備を行った。

次に、測定に関するすべての情報を統一的にXMLデータとして管理するプログラムを開発し、各種測定データ採取から統計解析処理およびその結果の保存、参照まで一元的に

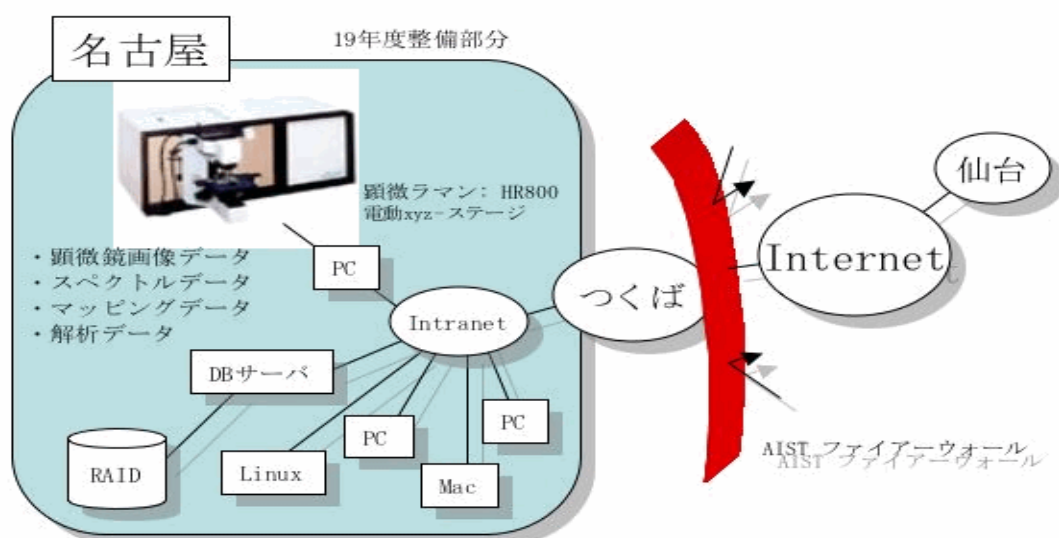


図 2.4.5-4 計測データの一元的管理環境の整備。

実行可能とする図 2.4.5-5 に示すようなシステム構築を行った。本システムを利用することによって、本プロジェクトにおいて導入した顕微ラマン装置用アタッチメントにより可能となった測定点数が最大3万を超えるような大量データの一括格納が可能となった。また、それだけではなく、各点のデータに空間位置情報等を付加したのち、スパイクノイズ除去などの必須のスペクトル前処理を行うとともに、マッピングデータを元にした各種不均質性解析までをシームレスに実行可能となった。しかも、それ

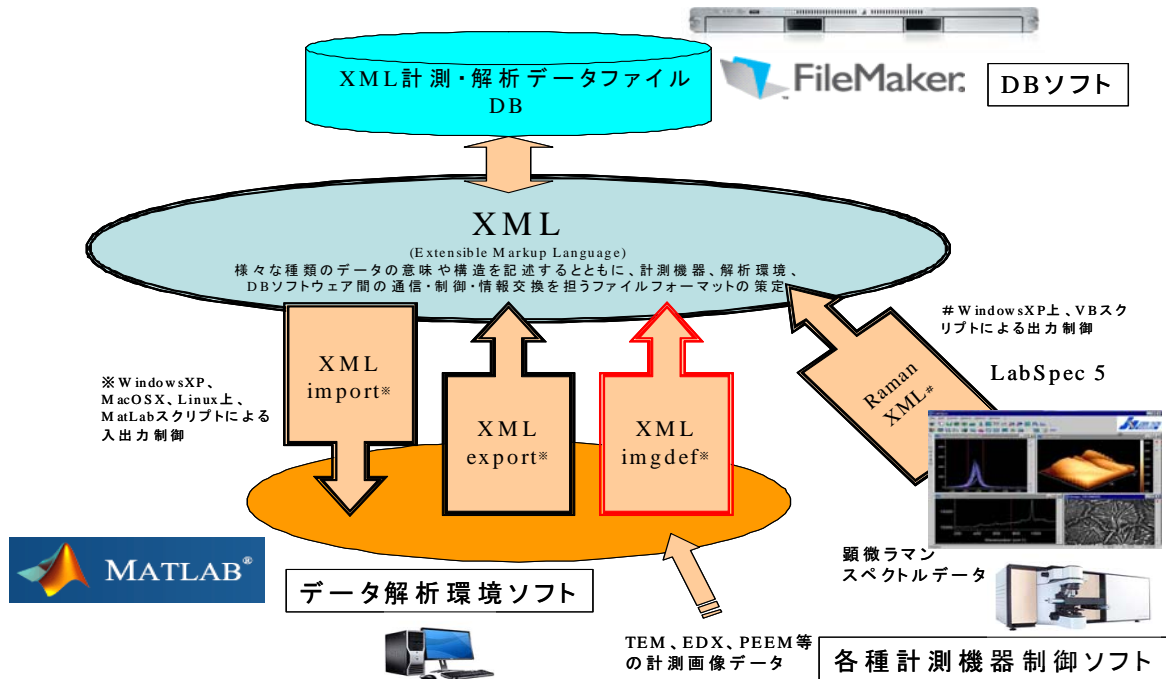


図 2.4.5-5 XML 環境におけるデータの一元的処理。

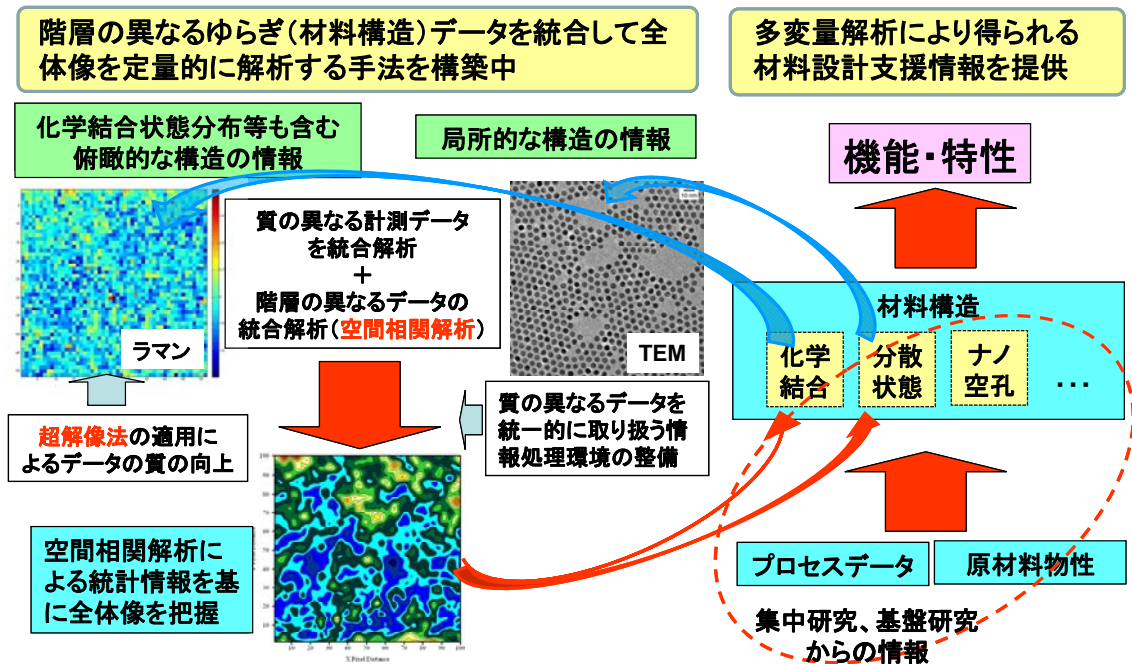


図 2.4.5-6 データの統合解析手法



らは特定のオペレーションシステムを必要としないマルチプラットフォーム環境で実現された。

今後は上記のような計測・解析システム環境の下で、図2.4.5-6に示すように、製造プロセス・原料に関する情報（原料特性、組成、製造プロセス条件等）と、地球統計学的解析により明らかとなる構造・化学結合状態のゆらぎや粒子分散状態に関する情報との間の関係を明らかにした上で、さらに材料機能との相関を明らかにするという二段階の多変量解析を行うことで、製造プロセス・原料に関する情報と機能とを直接的に結びつける予定である。これにより材料の設計を支援する情報の提供が可能になるものと期待できる。

## 2.4.6 技術動向調査と解析結果

### 2.4.6.1 調査事項及び方法

調査事項：

ナノ粒子製造技術に関して国内公開系特許文献による技術動向調査を行い、超臨界水熱合成法による有機修飾ナノ粒子の有機―無機ハイブリッド材料への応用技術についての分析を行う。

調査対象：

調査対象国：日本

調査期間：1993年1月～2009年4月

検索対象文献：特許文献（公開、公表、再公表）

検索テキスト：要約＋特許請求の範囲（全請求項）

調査方法：

調査は、商用データベースのNRIサイバーパテントデスクを使用し、日本国公開系特許文献の検索で行った。検索対象期間は1993年1月の電子広報発行以降とした。ナノ粒子製造技術に関連する特許分類を調べ、キーワードとの複合検索により、分析対象となる母集団を抽出した。この抽出した母集団について、書誌的事項や法的ステータスなどの属性データをもとに統計解析による概要の把握を行った。さらに、各特許文献[要旨]および[特許請求の範囲]に含まれるキーワードを分析することにより、いくつかの技術要素を抽出し分類を行った。この分類による技術要素別のクロス分析やランキング分析を行った。

特許分類：

日本国特許情報へアクセスする場合に、国際特許分類（IPC）、ファイルインデックス（FI）、Fタームなどの特許分類記号を利用すると精度の高い調査が可能である。「液相での金属、金属酸化物、珪素化合物のナノ粒子製造技術および製造装置」の観点から特許文献へアクセスするための特許分類の抽出を行った。

IPCの抽出：

IPCは、国際的に統一的に用いられている特許文献の技術内容による分類である。集中研より提示のあった参考文献に付与されているIPC、および独立行政法人工業所有権情報・研修館（INPIT）から提供されているパテントマップガイダンス、平成17年度特許流通支援チャート「ナノ粒子製造技術」（2006年3月）を利用し、表

表 2.4.6.1-1 ナノ粒子製造技術に関する I P C。

I P C	内容
B01J 2/00	物質の造粒プロセスまたは装置一般
B01J 3/00	物質の化学的または物理的変化を生じさせるため低圧または高圧を利用するプロセス；そのための装置
B01J 13/00	コロイド化学，例．他に分類されないコロイド状物質またはそれらの溶液の生成；マイクロカプセルまたはマイクロバルーンの製造
B01J 19/00	化学的，物理的，または物理化学的プロセス一般；それらに関連した装置
B22F 9/00	金属質粉またはその懸濁液の製造
B82B 1/00	ナノ構造物
B82B 3/00	ナノ構造物の製造または処理
C01B 13/00	酸素；オゾン；酸化物または水酸化物一般
C01B 33/00	けい素；その化合物

表 2.4.6.1-2 ナノ粒子製造技術に関する F I。

F I	内容
B01J 2/00@A	物質の造粒プロセスまたは装置一般
B01J 2/00@B	粒状物のコーティング
B01J 2/10@A	液中での攪拌による造粒
B01J 3/00	物質の化学的または物理的変化を生じさせるため低圧または高圧を利用するプロセス；そのための装置
B01J 13/00	コロイド化学
B01J 19/00	化学的，物理的，または物理化学的プロセス一般；それらに関連した装置
B22F 9/00	金属質粉またはその懸濁液の製造
B82B 1/00	ナノ構造物
B82B 3/00	ナノ構造物の製造または処理
C01B 13/00	酸素；オゾン；酸化物または水酸化物一般
C01B 33/00	けい素；その化合物

2.4.6.1-1 に示すように I P C をリストアップした。

F I の抽出：

F I は、日本国特許庁が審査官のファイル構成をもとに作成して分類であって、I P C をさらに細かく展開したものである。I P C と同様に、集中研より提示のあった表参考文献に付与されている F I、およびパテントマップガイダンス、平成 17 年度特許流通支援チャート「ナノ粒子製造技術」（2006 年 3 月）を利用し、表 2.4.6.1-2 に示すように F I をリストアップした。

F タームの抽出：

F タームは、特許庁が作成する詳細な分類データで、対応する F I に属する技術分野を、その技術分野を、目的・用途・構造・機能等、その技術内容や応用分野について多観的かつ横断的に細かく展開したものである。集中研より提示のあった参考文献に付与されている F ターム、およびパテントマップガイダンス、平成 17 年度特許流通支

表 2.4.6.1-3 ナノ粒子製造技術に関するFターム。

テーマコード	対応するF I	Fターム	内容
4G004	B01J2/00-2/30		造粒
		AA00	物質の造粒プロセスまたは装置一般
		AA01	・微粒子の製造
4G042	C0B13/00-13/36		酸素；オゾン；酸化物一般
		DA00	酸化物または水酸化物の製造（構成元素）
		DB00	酸化物または水酸化物の製造（製法、処理法）
		DC00	酸化物または水酸化物の製造（用途、有用性）
		DD00	酸化物または水酸化物の製造（形状、構造）
4G065	B01J13/00-13/00@Z		コロイド化学
		BB01	・液態（液体、溶液）
		BB03	・・粒状物、粉体
		CA11	・・サスペンション（分散物、懸濁液）
		CA21	・・粒状物、粉体
4G075	B01J10/00-12/02@Z;14/00-19/32		物理的、化学的プロセスおよび装置
		AA27	・・・微粒子の製造、処理
		CA02	・・加熱
		CA65	・・特殊な圧力（超高压等）の採用
4K017	B22F9/00-9/30@Z		金属質粉又は懸濁液の製造
		AA08	・懸濁液
		CA08	・超微粉
4K018	B22F1/00-8/00; C22C1/04-1/05@Z;33/02-33/12, 103@Z		粉末冶金
		BB04	・粒径、粒度分布が特定されているもの
		BB05	・・超微粒子
4G072	C01B33/00-33/193		珪素及び珪素化合物

援チャート「ナノ粒子製造技術」（2006年3月）を利用し、表 2.4.6.1-3 に示すように Fタームをリストアップした。

## 2.4.6.2 検索結果

予備検索（キーワード検索）：

まず、予備検索としてナノ粒子をキーワードとして検索を行った。ナノ粒子の異表記を考慮し、以下に示す検索式で、要約および特許請求の範囲を対象に検索を行ったところ、60,392件がヒットした。

S1 = (微粒子+ナノ粒子+微粉体+ナノパーティクル+ナノパーチクル+  
ナノパーチカル+ナノパーティカル) 60,392件

特許分類による検索：

各特許分類による文献集合は以下の通りとなった。

I P C

S2=B01J2/+ B01J3/+ B01J13/+ B01J19/+ B22F9/+ B82B1/+ B82B3/+  
C01B13/+ C01B33/ 38,389件

F I

S3=B01J2/+ B01J3/+ B01J13/+ B01J19/+ B22F9/+ B82B1/+ B82B3/+  
C01B13/+ C01B33/ 37,178件

F ターム

S4=4G004-AA00+4G004-AA01+4G042-DA00+4G042-DB00+4G042-DC00+  
4G042-DD00+4G042-DE00+4G065-BB01+4G065-BB03+4G065-CA11+  
4G065-CA21+4G075-AA27+4G075-CA02+4G075-CA65+4K017-AA08+  
4K017-CA08+4K018-BB04+4K018-BB05+4G072-DD07 10,347件

## 2.4.6.3 分析対象母集団の抽出

F I は I P C を更に細かく展開したものである。あまり技術分野を限定してしまうことなく網羅的に文献を抽出するためにメイングループまでの利用とした。したがって、I P C と F I による抽出文献集合はほぼ共通していると考えられるので、それらの和集合(S2+S3)を取り、それにFタームによる抽出文献集合 S4 さらにキーワード検索による集合 S1 の積集合を取ったところ 1,596 件となった。

S5=(S2+S3)\*S4\*S1 1,596件

集合 S5 の 1,596 件には、目的とするナノ粒子製造技術に関する特許文献が網羅的に含まれていると考えられるので、これを母集団として分析を行うこととする。

## 2.4.6.4 特許文献の分析

### 2.4.6.4.1 母集団の出願件数の推移

ナノ粒子製造技術に関する母集団の出願件数の推移を図 2.4.6.4-1 に示す。日本国特許の場合出願から 1 年 6 ヶ月で公開となる。1993 年 1 月～2009 年 4 月の期間に公開された特許文献を対象としているため、1990 年～2007 年の出願分が反映されていると考えられる。1993 年に一度ピークを示し、2000 年以降急激に出願件数が増加し 2005 年に最大となり、それ以降は減少を示している。また、図 2.4.6.4-2 は法的ステータス別件数の推移、図 2.4.6.4-3 は出願件数に対する審査請求および登録件数の比率の推移を示す。審査請求は出願日から 3 年以内に行われ、実態審査は審査請求から 2 年ほどで行われているので、出願から 5 年程度で査定が決まると考えられる。よって審査請求件数は 2004 年以前、登録件数は 2002 年以前でほぼ実態を反映していると考えられる。審査請求の比率は期間を通してほぼ 70%程度で横ばいである。登録比率は 1997 年以前で 50%程度であったが、それ以降漸減を示し 2003 年頃には 20%程度となっている。近年この分野における登録が難しくなっていることから、技術的に成熟期に入っていることが窺える。

#### 2.4.6.4.2 主要出願人の出願状況

図 2.4.6.4-4 は出願件数上位 1 位～20 位までの主要出願人の出願件数の推移である。1 位、2 位を産業技術総合研究所および科学技術振興機構の公的機関が占め、調査期間中ほぼ一定して毎年出願がなされていることから、ナノ粒子製造について 15 年以上前

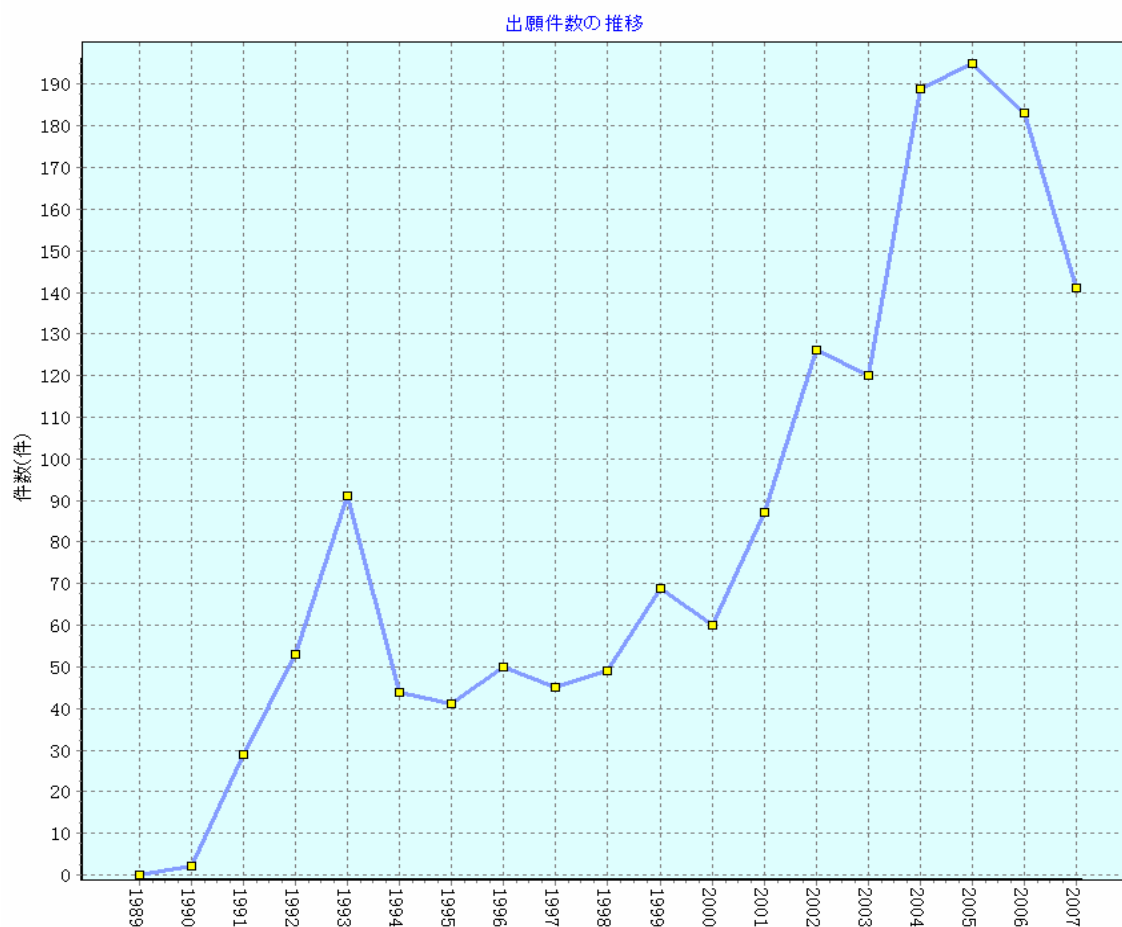


図 2.4.6.4-1 出願件数の推移。

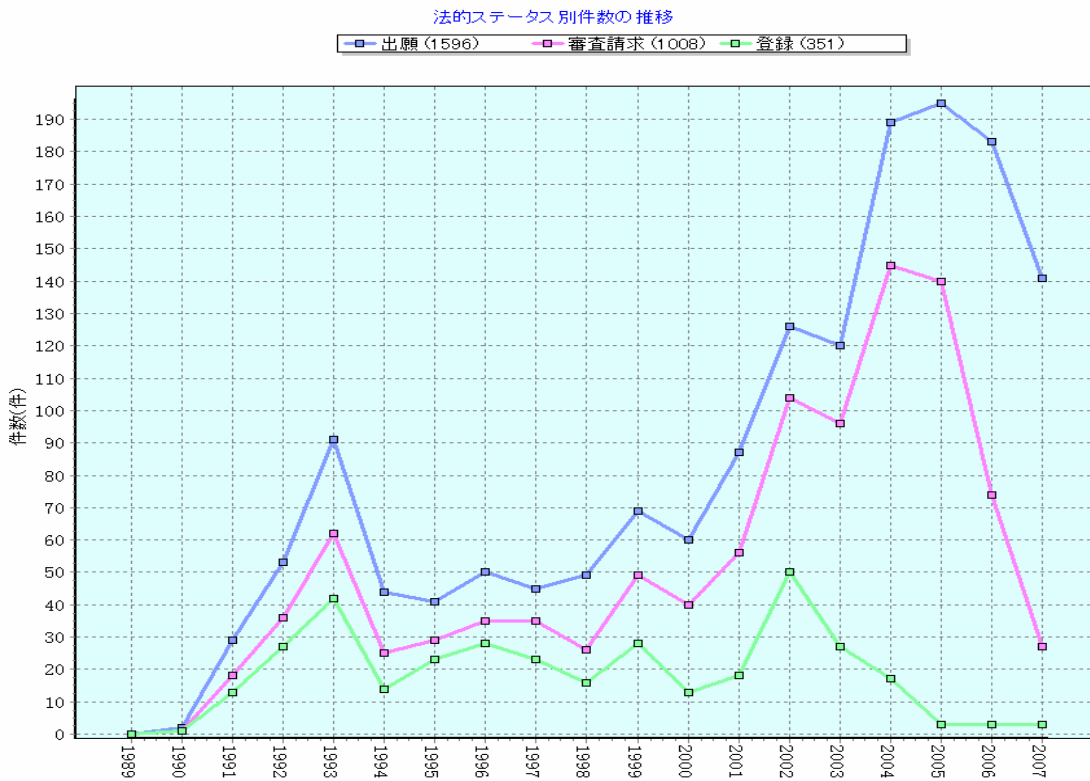


図 2.4.6.4-2 法的ステータス別出願件数の推移。

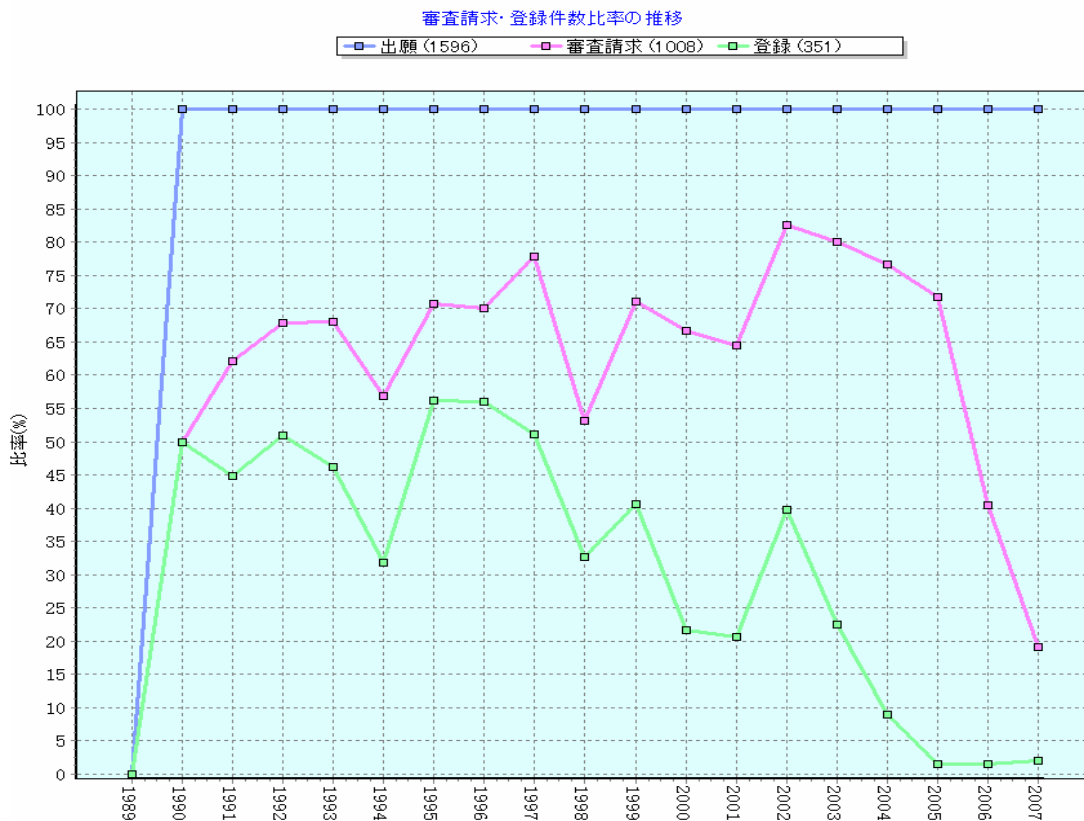


図 2.4.6.4-3 出願件数に対する審査請求および登録件数の比率の推移。

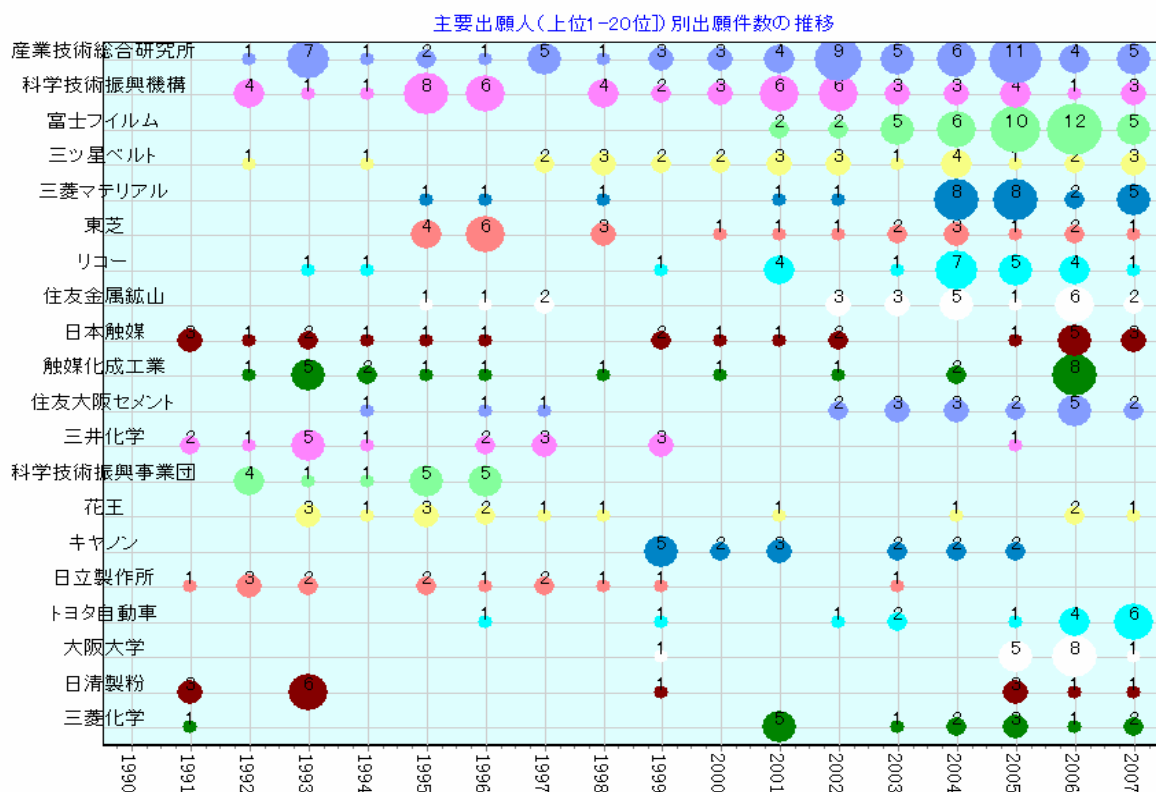


図 2.4.6.4-4 出願件数上位 1 位～20 位までの主要出願人の出願件数の推移。

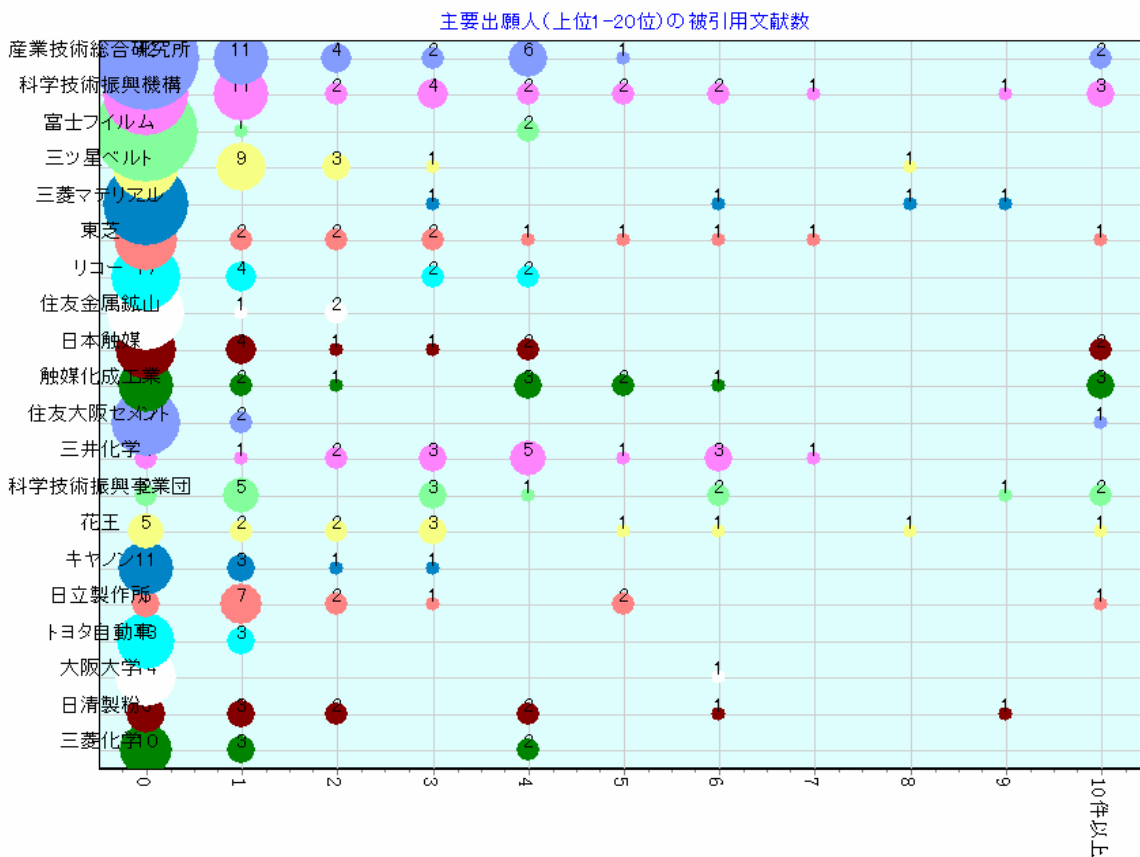


図 2.6.4.4-5 出願件数上位 1 位～20 位までの主要出願人の被引用文献数。

表 2.4.6.4-1 技術要素の抽出条件。

技術要素	件数	含まれる単語または係り受け
加熱還流重合	69	重合+還流
加水分解	51	加水分解
ゾルーゲル	70	ゾル+ゲル
液相還元法	142	コロイド+還元法
超臨界	46	超臨界+水熱+亜臨界
液中分散法	48	エマルジョン+ミセル
表面改質	184	(表面-被覆)+(表面-処理)+(表面-修飾)+(表面-改質)+(表面-コーティング)+(修飾-微粒子)+(コーティング-形成)+(コーティング-微粒子)+(ナノ粒子-改質)+(ナノ粒子-修飾)

から継続して研究が行われていることが分かる。民間企業では日本触媒、触媒化成工業が期間中継続的に出願を行っており、2001年以降に富士フィルム、三ツ星ベルト、三菱マテリアル、東芝、リコー、住友大阪セメント、トヨタ自動車、三菱化学などの企業がこの分野での出願を増やしている。一方で三井化学、花王、日立製作所などは2000年以降出願が減少している。

#### 2.4.6.4.3 主要出願人の被引用文献数

図 2.4.6.4-5 は出願件数上位 1 位～20 位までの主要出願人の被引用文献数を示す。被引用文献数は特許庁審査官による審査における引用数で、先行性や他社への阻害力を測る指標となる。産業技術総合研究所、科学技術振興機構、日本触媒、触媒化成工業など過去から継続して研究を行っている出願人で、比較的被引用文献数が多い出願があり、他社からの出願の阻害力がある重要特許を持っていると考えられる。

#### 2.4.6.4.4 グルーピングによる技術要素別分析

母集団をいくつかの技術要素別にグルーピングを行った。独立行政法人工業所有権情報・研修館発行の平成 17 年度特許流通支援チャート「ナノ粒子製造技術」(2006 年 3 月)によると、作製される粒子が溶液分散系で得られるナノ粒子製造法として、液相還元法(陰極還元、その他還元反応を利用した方法、コロイド法)、水熱合成法(超臨界水熱合成)、ゾルーゲル法、加水分解法、加熱還流重合、液中分散法(ミセル法、エマルジョン法)などがある。また、重要な技術課題として粒子表面を改質、被覆、修飾などによる表面高機能化処理が挙げられている。そこで、これら技術要素に関するキーワードで抽出することにより、母集団のグルーピングを行った。また、表面改質技術に関しては、2つの単語同士の係り受け関係がある文章を含む文献を抽出する方法によりグルーピングを行った。技術要素抽出条件を表 2.6.4.4-1 に示す。

図 2.6.4.4-6 は各技術要素と出願件数上位 1 位～20 位までの主要出願人のクロス分



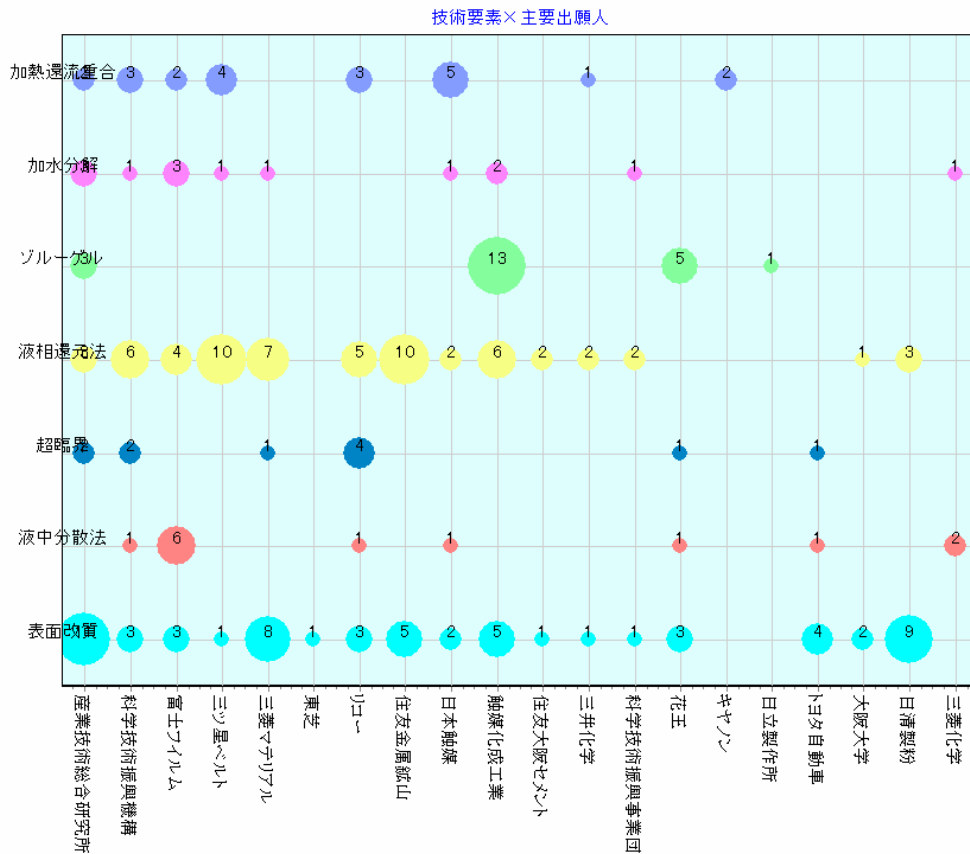


図 2.4.6.4-6 各技術要素と主要出願人のクロス分析。

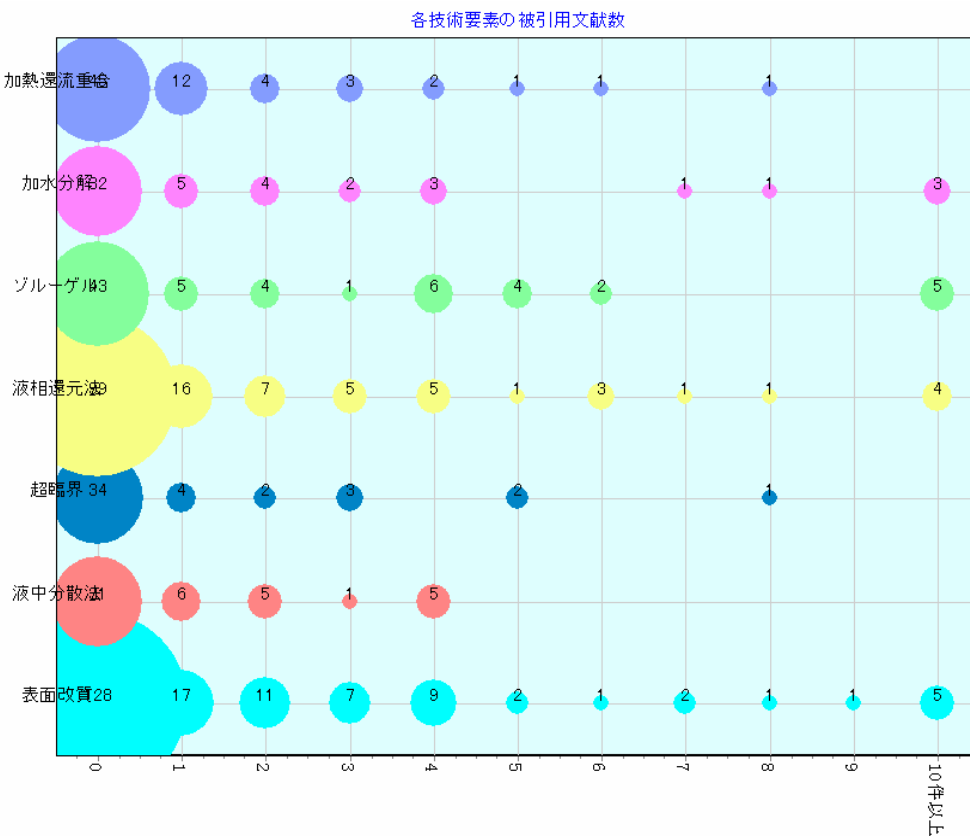


図 2.4.6.4-7 各技術要素別の被引用文献数。

析を示す。これにより各出願人がどの技術要素について取り組んでいるのかが分かる。産総研および J S T はほぼすべての技術課題に取り組んでいると考えられる。表面改質はいずれの出願人も取り組んでおり、粒子表面の高機能化処理がナノ粒子の応用のキーとなる技術課題であると考えられていることが窺える。

図 2.4.6.4-7 は各技術要素別の被引用文献数を示す。表面改質で被引用文献数が多い文献が見られることから重要課題として位置づけられる。製造方法としては加水分解法、ゾルーゲル法、液相還元法などで重要特許が比較的多いようである。

#### 2.4.6.4.5 超臨界法に関する分析

図 2.4.6.4-6 より超臨界法に取り組んでいるのは上位 20 位まででは産総研、J S T、三菱マテリアル、リコー、花王、トヨタ自動車である。また超臨界法に関する特許文献は表 2.4.6.4-1 より 46 件ある。表 2.4.6.4-2 に超臨界法に関する 46 件の特許文献の一覧を示す。表 2.4.6.4-2 では、非引用文献数の他に閲覧請求数も加えた数を指標として順位をつけて示してある。閲覧請求数は他社からの注目度を測る指標で、被引用文献数と合わせることで特許文献の注目度を測る指標となる。表 2.4.6.4-2 では 4 位、5 位に特開 2005-193237「有機修飾微粒子」東北テクノアーチ、特開 2006-282503「有機修飾微粒子」東北テクノアーチがランキングされている。閲覧請求が 3 件あり他社からの関心を得ていると考えられる。図 2.4.6.4-8 は、技術要素×技術要素のクロス分析を示す。この分析により複合的技術課題に取り組んでいる文献を抽出することができる。例えば超臨界と表面改質がクロスする部分（青丸または水色丸）を見ると 6 件の特許文献がある。これは超臨界法によるナノ粒子形成と表面修飾を行っている文献を含んでいると考えられる。この 6 件の文献リストを表 2.4.6.4-3 に示す。前記東北テクノアーチの特許 2 件が含まれており、超臨界水熱合成法により表面有機修飾金属酸化物ナノ粒子としてオリジナリティの高いものと考えられる。

#### 2.4.6.5 調査のまとめ

ナノ粒子製造技術に関連する特許分類の抽出、分析対象となる母集団の抽出を行った。抽出母集団について、グルーピングによる分析を行い、特に超臨界法によるナノ粒子製造技術、粒子表面改質技術について分析を行った。ナノ粒子製造技術については 2000 年以降急激に研究が盛んになってきたが、現在は技術的成熟期に入っており、その利用技術に研究のポイントがシフトしていると考えられる。ナノ粒子の表面改質技術は、いずれの出願人も活発に取り組んでおり、粒子表面の高機能化処理がナノ粒子の応用のキーポイントとなる技術課題であると考えられていることが窺え、近年はナノ粒子製造から利用技術へと技術課題がシフトしていると考えられる。有機修飾されたナノ粒子を利用した有機-無機ハイブリッド材料開発は現在重要な技術分野となっていると考えられる。ナノ粒子表面に強固な結合を介して有機基を結合させる技術は、特に重要な技術と考えられ、東北テクノアーチの特開 2005-193237「有機修飾微粒子」、特開 2006-282503「有機修飾微粒子」などは表 5 においても上位にランキングされ、超臨界法の中でも優れた特性が期待できる粒子合成法として注目を得ていると言える。

表 2.4.6.4-2 超臨界法に関する特許文献一覧。

順位	文献番号	出願日・ 国際出願日	名称	出願人	審査請求	査定種別	被引用文献数	閲覧請求数	被引用文献数 + 閲覧請求数
1	特開2002-210356	2001/10/10	複合化粒子の製造法	花王	有	登録	8	3	11
2	特開平10-151339	1996/11/22	連続水熱反応による微粒子製造用装置	山崎 伸道 エヌケーケー総合設計 ワイケイケイ	有	登録	5	0	5
3	特開2001-129389	1999/11/2	微粒子の製造方法及び膜の形成方法	大川原化工機	有	拒絶	5	0	5
4	特開2005-193237	2004/1/8	有機修飾微粒子	東北テクノアーチ	有	登録	0	3	3
5	特開2006-282503	2004/1/8	有機修飾微粒子	東北テクノアーチ	有	登録	0	3	3
6	特開2003-96198	2001/9/21	シリコーン樹脂から微粒子を形成する方法及びこの方法により得られた微粒子	リコー	有		3	0	3
7	特開2002-248333	2001/2/22	金属または金属化合物微粒子の製造装置およびその方法	三菱マテリアル	有	拒絶	3	0	3
8	特開2001-129382	1999/11/2	微粒子のコーティング方法及び装置	大川原化工機	有		3	0	3
9	特開平5-293361	1992/11/12	耐溶剤沈降によるタンパク微粒子の形成方法	ザトラスティーズ オブ プリンストン ユニヴァーシティ	有	登録	2	0	2
10	特開2000-213862	1999/1/20	乾燥粉体の製造方法及び装置	井上製作所	有	登録	2	0	2
11	特表2007-526113	2005/2/11	向流混合反応装置	ザ ユニバーシティ オブ ノッティンガム	有		1	0	1
12	特開平6-321541	1993/5/18	ジルコニア単分散球状超微粒子粉末の製造方法	加藤 悦朗	未		1	0	1
13	特開平5-293352	1991/8/31	異形状微粒子の製造方法	神戸製鋼所	未		0	1	1
14	特開2005-103461	2003/9/30	溶質の溶解性を改善した超臨界微粒子製造装置	大川原製作所	有	拒絶	1	0	1
15	特開2004-195307	2002/12/17	高圧流体を用いて微粒子や微細カプセルを製造する方法及びその装置	アイテック	有	拒絶	1	0	1
16	特表2005-531408	2003/6/20	エマルジョンの超臨界流体抽出により製造された粒子	フエロ フファンシュティール ラボラトリス、インク	有		0	0	0
17	特表2007-511357	2004/11/19	高密度流体プロセスの温度、圧力、密度を制御する方法とプロセス	エッセーエフ テクノロジーズ アクティベールスカブ	有		0	0	0
18	特開2007-111693	2004/11/19	高密度流体プロセスの温度、圧力、密度を制御する方法とプロセス	エッセーエフ テクノロジーズ アクティベールスカブ	有		0	0	0
19	特開2000-225333	1999/12/22	安定な微粒子粉末を製造する方法及び装置	ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア	有		0	0	0
20	特表2005-514186	2002/3/12	微粒子の製造方法	オーバーン ユニバーシティ	有	拒絶	0	0	0
21	特表2007-529627	2005/3/9	超臨界流体を使用する、基材上に分散された金属粒子の沈着	コロムビア ケミカルズ カンパニー	有		0	0	0
22	特開2005-301250	2005/3/15	トナー及びその製造方法、並びに、現像剤、トナー入り容器、プロセスカートリッジ、画像形成装置及び画像形成方法	リコー	有		0	0	0
23	特開2007-210092	2006/12/26	ナノ粒子を製造する方法及びシステム	ゼネラル・エレクトリック・カンパニー	未		0	0	0
24	特開2007-16219	2006/6/6	超微小粒子の製造方法	トス	未		0	0	0
25	特開2005-52715	2003/8/1	反応システム及び同システムに用いる微粒子捕集装置	産業技術総合研究所	有	登録	0	0	0
26	特開2004-119790	2002/9/27	ナノ粒子の超臨界流体中分散液を用いる微細配線パターン形成方法	ハリマ化成	有	登録	0	0	0
27	特開2003-10672	2001/7/3	超臨界媒体中での固体改質方法	科学技術振興機構	有	登録	0	0	0
28	特開2000-327320	1999/5/21	微小粒子状シリカゲル及び金属化合物微粒子内包粒子状シリカゲルの製造方法	AGCエスアイテック	有	登録	0	0	0
29	特開2000-210553	1999/1/20	分散液の製造方法及び装置	井上製作所	有	登録	0	0	0
30	特開平10-67504	1996/8/28	金属複合酸化物超微粒子の製造方法	トヨタ自動車	未		0	0	0
31	特開2009-68054	2007/9/12	金属微粒子含有分散媒体の製造方法及び金属微粒子含有分散媒体の製造装置と金属微粒子含有分散媒体及び金属インク	リコー	未		0	0	0
32	特開2008-86881	2006/9/29	機能性微粒子、および、機能性微粒子の製造方法	出光テクノファイン	未		0	0	0
33	特開2008-254969	2007/4/5	薄片状酸化鉄微粒子、薄片状Fe系金属微粒子及びそれらの製造方法	関東電化工業	未		0	0	0
34	特開2007-7524	2005/6/29	超臨界溶液急速冷却法による単分散超微粒子の製造方法及び装置	かがわ産業支援財団	有		0	0	0
35	特開2006-281056	2005/3/31	超臨界流体を用いた微粒子の製造方法並びにその装置	大川原製作所	有		0	0	0
36	特開2006-136764	2004/11/10	マイクロリアクタ、及びこれを用いた微粒子製造方法	リコー	有		0	0	0
37	特開2005-7293	2003/6/19	超臨界微粒子製造装置	大川原製作所	有	拒絶	0	0	0
38	特開2005-270897	2004/3/26	超臨界微粒子製造装置	大川原製作所	有		0	0	0
39	特開2005-262116	2004/3/19	超臨界微粒子製造装置	大川原製作所	有		0	0	0
40	特開2005-246257	2004/3/4	超臨界微粒子製造装置	大川原製作所	有		0	0	0
41	特開2005-125246	2003/10/24	有機物の超微粒子生成装置	松岡 正邦 内田 博久 耐圧硝子工業	有		0	0	0
42	特開2004-148174	2002/10/29	超臨界流体を利用して微粒子を製造する方法および装置	神戸製鋼所	有	拒絶	0	0	0
43	特開2003-311177	2002/9/20	微粒化方法および装置	日立造船 吉田機械興業	有	拒絶	0	0	0
44	特開2002-179422	2000/12/8	安定化されたシリカゾル及び製紙用コーティング剤	水澤化学工業	有		0	0	0
45	再公表06-57374	2005/11/21	複合微粒子の製造方法	科学技術振興機構	有		0	0	0
46	再公表05-92487	2005/3/25	超臨界処理方法およびそれに用いる装置	産業技術総合研究所	有		0	0	0

技術要素×技術要素

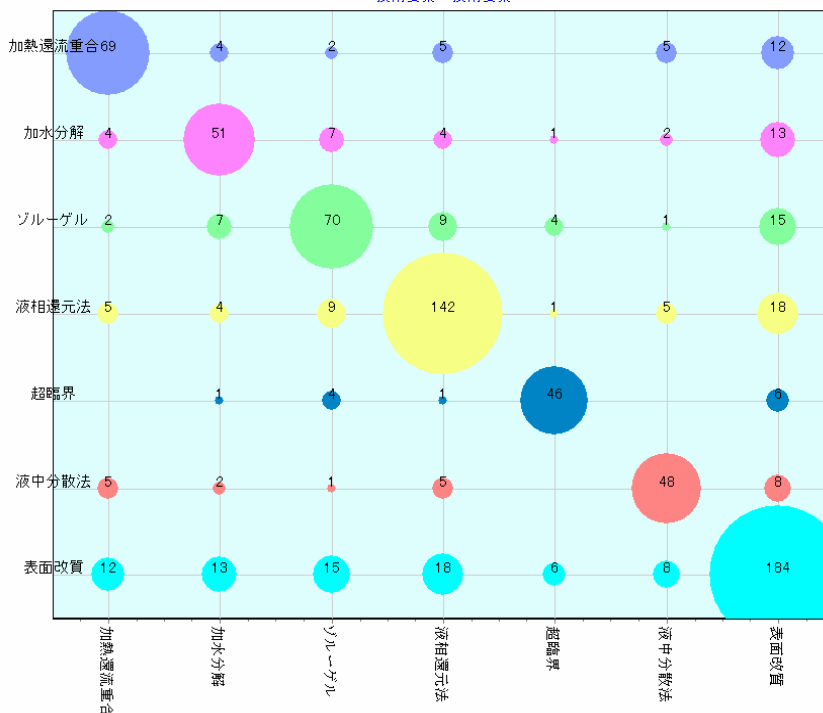


図 2.4.6.4-8 技術要素×技術要素のクロス分析。

表 2.4.6.4-3 超臨界×表面改質で抽出されて特許文献一覧。

日付	文献番号	名称	出願人2	発明者	被引用文献数	閲覧請求数	要約
2007/4/5	特開2008-254969	薄片状酸化鉄微粒子、薄片状Fe系金属微粒子及びそれらの製造方法	関東電化工業	飯沼 秀彦 守谷 好美 石澤 邦彦 林 政友	0	0	【課題】有機物中への分散性、配向性に優れ、粒子径及び粒子の厚さの制御が可能であり、粒子形態及び粒度分布が均一な薄片状酸化鉄微粒子及び薄片状Fe系金属微粒子並びにそれらの製造方法を提供すること。【解決手段】珪素及びマグネシウムを含有し、粒子径が0.01~100μm、アスペクト比が3~200である薄片状酸化鉄微粒子及び薄片状Fe系金属微粒子。該薄片状酸化鉄微粒子は、珪素及びマグネシウムを添加した鉄水酸化物含有水溶液を水熱反応することにより製造され、また該薄片状Fe系金属微粒子は、該薄片状酸化鉄微粒子をさらに還元することにより製造される。【選択図】なし
2004/1/8	特開2006-282503	有機修飾微粒子	東北テクノアーチ	阿尻 雅文	0	3	【課題】 ナノ粒子のような微粒子は様々な特有の優れた特性・機能を示すことから、ハイテク製品の開発に不可欠な材料として注目されているが、その表面に強固な結合を介して有機基を結合させる技術の開発が求められている。【解決手段】 高温高压水を反応場とすることで、金属酸化物微粒子表面と有機物との間で強結合せしめて有機修飾金属酸化物微粒子を得ることができる。同様な条件を使用すれば、金属酸化物微粒子の形成とその生成微粒子表面を有機修飾することもできる。得られた有機修飾金属酸化物微粒子は、優れた性状・特性・機能を発揮する。【選択図】 なし
2005/3/15	特開2005-301250	トナー及びその製造方法、並びに、現像剤、トナー入り容器、プロセスカートリッジ、画像形成装置及び画像形成方法	リコー	石井 雅之 田中 千秋 濃邊 真弘 内藤 啓 斉藤 拓也	0	0	【課題】 超臨界流体及び亜臨界流体の少なくともいずれかにより、表面に被覆層が形成されてなり、難溶性、帯電性能及び表面性状などに優れたトナー及びその効率的、かつ環境への負荷が小さいトナーの製造方法などの提供。【解決手段】 少なくとも樹脂微粒子を含むトナー母体粒子を製造するトナー母体粒子製造工程と、超臨界流体及び亜臨界流体の少なくともいずれかを用いて前記トナー母体粒子の表面にトナー機能性物質を付着乃至被覆させて被覆層を形成する被覆層形成工程を含むトナーの製造方法である。該超臨界流体及び亜臨界流体の少なくともいずれか、トナー母体粒子を溶解させることなく、トナー機能性物質を溶解可能である態様などが好ましい。【選択図】 図1
2004/1/8	特開2005-193237	有機修飾微粒子	東北テクノアーチ	阿尻 雅文	0	3	【課題】 ナノ粒子のような微粒子は様々な特有の優れた特性・機能を示すことから、ハイテク製品の開発に不可欠な材料として注目されているが、その表面に強固な結合を介して有機基を結合させる技術の開発が求められている。【解決手段】 高温高压水を反応場とすることで、金属酸化物微粒子表面と有機物との間で強結合せしめて有機修飾金属酸化物微粒子を得ることができる。同様な条件を使用すれば、金属酸化物微粒子の形成とその生成微粒子表面を有機修飾することもできる。得られた有機修飾金属酸化物微粒子は、優れた性状・特性・機能を発揮する。【選択図】 なし
2000/12/8	特開2002-179422	安定化されたシリカゾル及び製紙用コーティング剤	水澤化学工業	中川 英之 大江 賢一 小野 金一	0	0	【課題】 非晶質シリカ微粒子が細孔を有する状態で水中に安定にゾル化、及び吸着性のあるコーティングを形成できるシリカゾルを提供する。【解決手段】 水性媒体に分散された非晶質シリカ微粒子から成るシリカゾルであって、前記非晶質シリカ微粒子が、乾燥状態で測定して、細孔半径30乃至300オングストロームに細孔分布のピークを有しており且つその細孔半径の範囲で0.3mL/g以上の細孔容積を有するシリカゾル。
1999/11/2	特開2001-129382	微粒子のコーティング方法及び装置	大川原化工機	大川原 正明 伊藤 崇 堤 敦司	3	0	【課題】 微粒子の造粒及び凝集を防止することができるとともに、粒径が0.05~100μmの微粒子に均質かつ一定の厚さのコーティング層を効率的に被覆することができる微粒子のコーティング方法及び装置を提供する。【解決手段】 遠心力により微粒子を流動化しつつ、微粒子の濃厚相を形成させ、コーティング物質を含有した超臨界流体を、過熱超臨界ノズルから濃厚相に噴出させることにより、微粒子の表面上にコーティング物質を直接析出させ、微粒子に均一なコーティング層を被覆させ、微粒子を循環滞留又は流動滞留させる。

## 2.4.7 まとめと今後の課題

本研究項目においては、超ハイブリッド材料の機能・特性発現、共生、向上に資する材料設計支援情報を提供することを目標に、汎用装置や外部委託では計測が困難な材料構造、物性の計測と解析を進めてきた。また、それら計測結果に加えて他研究開発項目で行われる機能、特性、物性の計測結果、プロセス条件などから、材料設計に資する情報を引き出す統合解析方法の開発に取り組んだ。

計測に関しては、プロジェクト内での協議に基づき、分散粒子の表面修飾状態、プロセスの過程で発生するナノ空孔、粒子分散状態などの材料構造のゆらぎを中心とした計測、解析を担当することとなった。これらの計測手段には、本研究開発項目を担当する九州大学、産総研が既に有する装置、技術を活用することを前提として、三次元 TEM、光電子顕微鏡、陽電子消滅法、固体 NMR、TOF-SIMS、顕微ラマン分光を選択した。

超ハイブリッド材料の計測を開始する前段階として、技術や装置を目的とする材料に適用するための基盤整備が必要であった。このために、プロジェクト前半では固体 NMR の基準データや光電子顕微鏡、陽電子消滅法などで利用するビームラインの整備、計測効率の改善を進めた。また、試作材の予備的な計測・解析を通して材料表面近傍から内部に入った三次元計測情報や、組成分布、化学結合状態の計測が重要であると判断されたために、次のような計測装置、技術の性能確認、改良、高度化を進めた。

- ・陽電子ビームのエネルギー強化により、ナノ空孔計測を比重 1.2 の材料で表面から $\sim 5\mu\text{m}$ の深さまで可能とした。
- ・金属クラスターイオンにより超ハイブリッド材料の表面層を均質に加工する技術を開発し、PEEM、顕微ラマン分光などの三次元計測に道筋をつけた。
- ・PEEM による化学結合状態分布の計測、TOF-SIMS による組成分布計測の可能性を検証した。

以上の計測技術の基盤整備において、集中研究や基盤研究で試作される材料の計測・解析にも取り組み、次のような情報をプロジェクト内に提供した。

- ・TEM、固体 NMR により粒子表面修飾、結合状態、粒子分散状態への影響を確認し、粒子修飾の指針となるデータを提供した。(電気・電子材料、光学材料)
- ・未修飾粒子ではナノ空孔が表面深くまで発生しており、熱伝導阻害の可能性を指摘した。(電気・電子材料)
- ・ナノ空孔と屈折率に相関。ナノ空孔の低減が屈折率向上に重要であることを指摘した。(光学材料)
- ・他の手段では見えないナノ粒子の分散ゆらぎを確認。光透過率低下の原因である可能性を指摘した。(光学材料)

統合解析手法の開発については、データの質を高めるための超解像手法やゆらぎのマイクロ、マクロデータを統合解析する空間統計学(バリオグラム)を材料構造ゆらぎデータに適用することを試み、基本的な解析手順を構築した。また、多くの情報から材料設計指針を引き出すために、異種データ、階層(スケール)の異なるデータを統

合的に取り扱うための情報処理環境の整備を進めた。

以上のようにプロジェクト前半をかけて計測技術の基盤整備と統合解析の骨格形成を進めてきた。今後、統合解析技術の構築を加速するとともに、試作材料、開発材料の計測を本格化させる。特に、本年度から来年度前半にかけては開発が進んでいる光学材料の計測を中心に進め、系統的なデータ収集と統合解析を実施する。また、電気・電子材料についても開発の進捗に合わせて計測・解析を本格化させる。

材料設計に資する統合評価・支援技術開発まとめ

中間目標 の達成度	*超ハイブリッド材料特有の評価・解析技術として高解像度 TEM、 固体 NMR、陽電子ビーム等を駆使し材料開発へ提供 *不均一系のゆらぎのマイクロ・マクロデータを統合解析する空間 統計学の材料適応にチャレンジ構築中。				
成果の意義	*材料機能と構造状態をリンクする解析技術の構築 *機能発現に関わる経験則などを新しい知識体系として確立				
知的財産権 の取得	5 件				
成果の普及	論文及び 国際学会発 表	国内学会発 表	新聞雑 誌	国際学会 招待講演 (国内)	展示会
	1 件	14 件	0 件	0 件	0 件
成果の最終目 標 の達成可能性	*材料開発との連携を更に深め、構造状態をナノレベルまでの分 解能で多元的に解明し機能との関連を明確にする。 *多階層データを収集し統計処理アルゴリズムを開発する。				

## 2. 研究開発項目毎の成果 (財) 化学技術戦略推進機構・(独) 産業技術総合研究所)

### 2. 5 超ハイブリッド材料創製技術開発 (財) 化学技術戦略推進機構

#### 2. 5. 1 電気・電子材料分野

##### 2. 5. 1. 1 はじめに

##### 2. 5. 1. 1. 1 高熱伝導材料の必要性

電気・電子材料部材については、近年、電力輸送・変換、産業用電力装置、鉄道・自動車、家電製品の大幅な高効率（低消費電力）化、小型化、高性能化等の要求から、使用電圧・電流密度の上昇に伴い周辺部材の放熱性・耐熱性・絶縁性の向上が強く求められている。ここでは特に、絶縁部材を構成する樹脂複合材のイノベーション、すなわち超ハイブリッド部材開発が必要不可欠と言える。

##### 2. 5. 1. 1. 2 従来材の特徴と開発方針

従来より用いられている典型的な熱伝導性（放熱性）に優れる絶縁材料としては、セラミック基板が挙げられる。放熱性に関する優位技術（材料）であるセラミック基板と本開発の対象である超ハイブリッド材料（樹脂複合材料）に関して、特徴の対比関係を図 2.5.1.1-1 に示す。セラミック基板は高い熱伝導率を有し（数十～200W/mK 程度）耐熱性にも優れるため、特に電流密度が大きく高い放熱性が要求されるパワー半導体デバイスを中心に絶縁基板として利用されている。しかし、その成形には高温での焼結工程や機械加工（砥石による切断や研磨）が必要であり、絶縁材としての成形性に優れるとは言い難く、その利用形態も数 cm サイズの平板状のみに限られている。また、その他の部材との接着性や密着性にも乏しい。一方、樹脂複合材料はマトリックスを構成する樹脂（高分子材料）の特徴を反映して、成形性、柔軟性、加工性、接着性、密着性、じん性、絶縁性等多くの長所を有している。しかし、高熱伝導化のために充填材の量を単純に増やして行くと、成形性や絶縁性（耐電圧性）が低下するトレードオフの関係が生じてくる。そこで本開発では、このトレードオフを解消し、成形性や絶縁性を維持しつつ熱伝導性を大幅に改善する超ハイブリッド材料技術の開発を目的とする。

本開発の対象となる材料の形態（製品イメージ）等を図 2.5.1.1-2 に示す。開発対象は、大きく分けてパワーデバイス周辺材料と IC パッケージ周辺材料である。前者は主として放熱シート、あるいは絶縁シートと呼ばれるシート状の形態であり、発熱体（半導体素子等）やその下のヒートスプレッド、配線層と冷却器との間を接続し、絶縁と放熱を行うための部材である。最終的な加工（使用）の形態は、樹脂硬化を伴う接着状態や表面の柔軟性を利用した密着状態（圧着等による）である。後者は、さらに封止材と接着剤に分かれており、封止材は主にトランスファー成形に適したペレット形状、接着剤はディスペンサを用いた塗布が可能なペースト状態が製品イメージとなる。

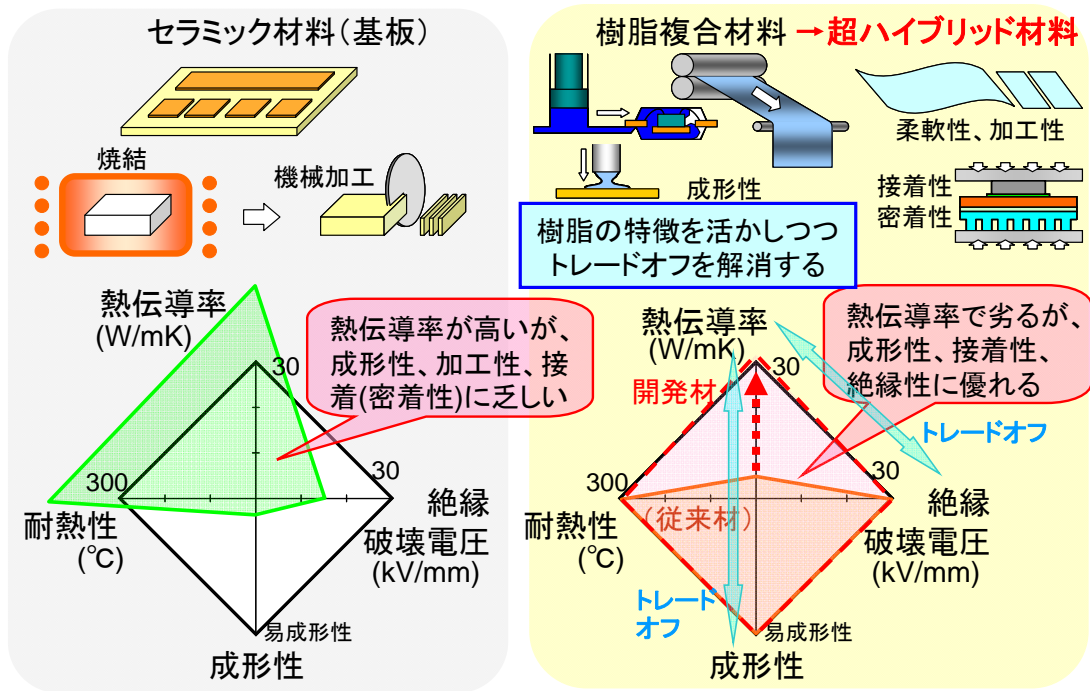


図 2.5.1.1-1 従来材の特徴と開発方針

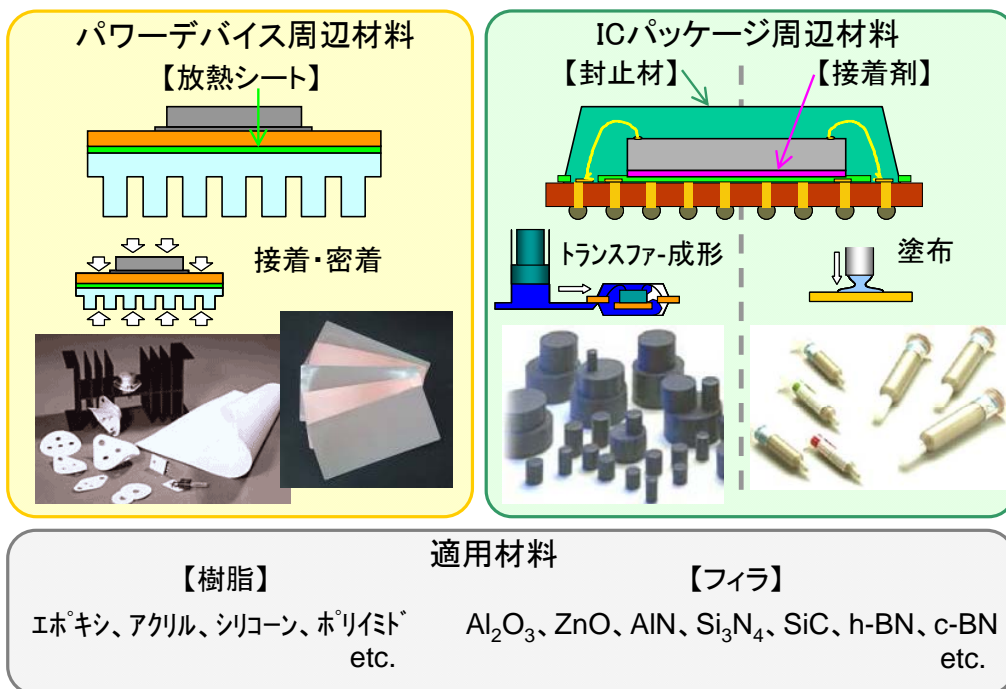


図 2.5.1.1-2 開発材料の形態

### 2.5.1.1.3 高熱伝導材料開発のコンセプト

製造プロセスに着目した熱伝導性と加工性のトレードオフ解消のコンセプトを図 2.5.1.1-3 に示す。図はイメージであり必ずしもここに示したような 1 ラインでの連続プロセスだけではないが、本開発では樹脂複合材料の成形性という特徴を活かした製



造プロセスを想定した材料開発を目指す。

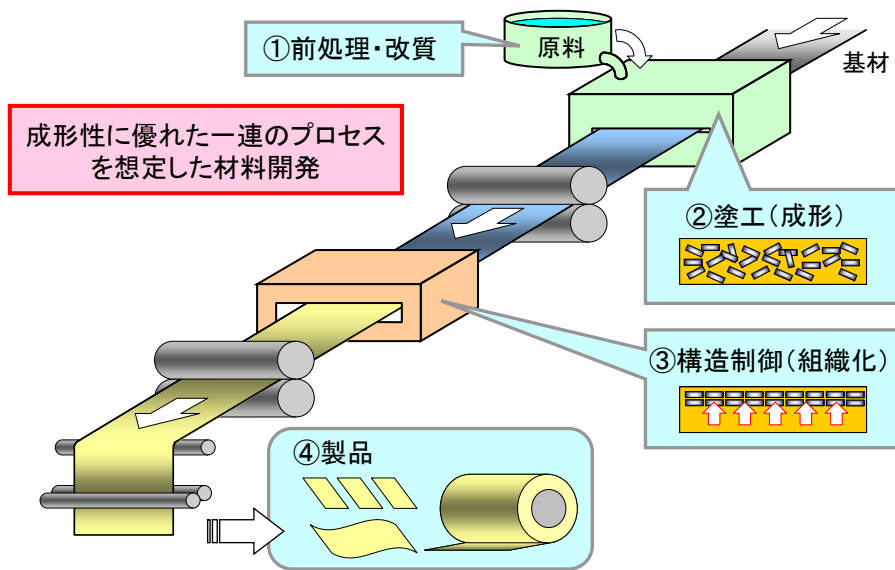


図 2.5.1.1-3 開発コンセプト トレードオフ（熱伝導性⇔加工性）の解消①

フィラ充填率に着目した熱伝導性と加工性のトレードオフ解消のコンセプトを図 2.5.1.1-4 に示す。従来、特に高熱伝導性のフィラを高充填した複合材においては、充填率から期待される熱伝導率が得られない場合がある。この場合、樹脂-フィラ界面の熱抵抗の影響が懸念され、有機-無機界面の親和性を制御する界面制御が有効であると考えられる。また、界面制御による成形過程での低粘度化と、その結果として可能となる更なる高充填化（すなわち高熱伝導化）も期待できる。一方、成形過程での低粘度化による流動性向上、及び外場や相分離等のプロセス技術の適用、組合せによって、成形過程での構造制御（伝熱パス形成）も期待できる。

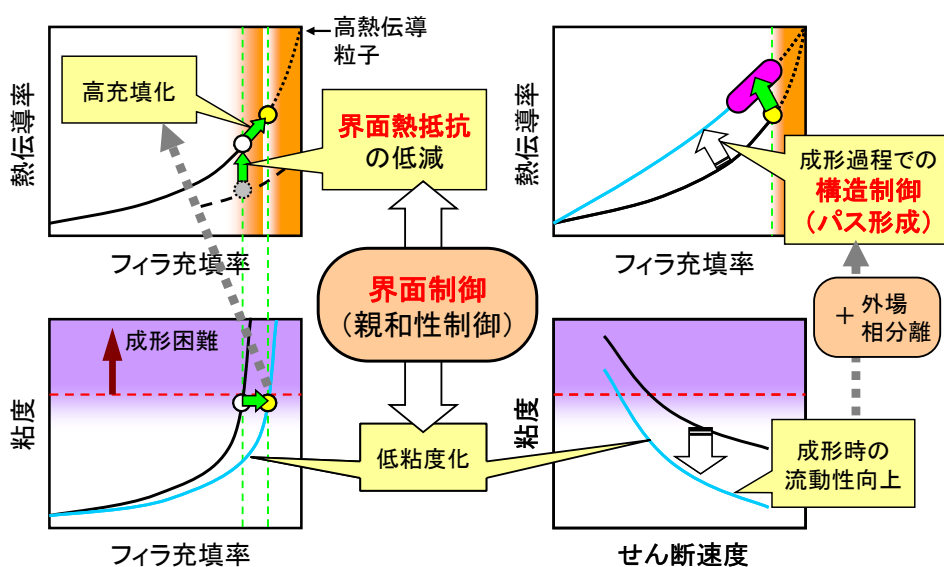


図 2.5.1.1-4 開発コンセプト トレードオフ（熱伝導性⇔加工性）の解消②

## 2. 5. 1. 2 有機－無機界面熱抵抗

### 2. 5. 1. 2. 1 有機－無機複合材料の熱抵抗

熱抵抗とは、材料の厚さを熱伝導率で割った値である。樹脂－フィラ複合材料の熱抵抗は、樹脂とフィラのバルク熱抵抗とそれらの界面熱抵抗の合計で表され、界面熱抵抗としては、コアシェル状の粒子であればフィラ表面の熱抵抗層（シェル）に起因するもの、界面密着性に起因するもの、すなわちマクロな剥離やボイド、ミクロな親和性の不足、そして、有機－無機界面フォノン散乱などが挙げられる。樹脂とフィラのバルク熱抵抗は材料そのものの熱伝導率に依存するので、一般に熱伝導率の高いフィラの体積比率（フィラ充填率）を高めたり、樹脂やフィラとしてより高い熱伝導率を有する材料を適用する方法により、従来からその低減が図られてきたが、更に熱抵抗を下げるためには、界面熱抵抗の低減が重要と考えられる。特に、有機－無機界面近傍におけるフォノン伝導（及び散乱）を考える場合、無機物表面付近の中間層の有無や構造、無機物／有機物界面における有機分子の配置や構造等を考慮して何が熱伝導の支配因子であるかを見極め、これを制御する必要がある。本研究では、まずこの界面熱抵抗の定量的評価と低減の可能性を検討した。

### 2. 5. 1. 2. 2 有機－無機界面熱抵抗の評価及び低減

マイクロメートル以下のサイズの複合構造を有する有機－無機複合材料の熱伝導性（熱伝導率、あるいは熱抵抗）評価において、有機－無機界面抵抗の寄与を評価することは非常に難しく、特に定量的に分離して評価することは実質的に不可能と言える。そこで、できるだけシンプルな構成の試料を用いてバルクと界面の熱抵抗の寄与を分離できるように、セラミック板と樹脂を積層した平板モデルでの実験で熱抵抗評価を行った。

次に界面熱抵抗の低減の可能性について検討した。本研究で用いている鏡面研磨基板の平滑性が、界面凹凸による濡れ性やボイドの影響を除外しても良いほど十分に高いと仮定すれば、界面での熱伝導性は基板－樹脂界面における有機分子－無機物間の親和性や結合状態に依存している可能性が高い。そこで、樹脂／セラミック間の親和性を高めれば界面熱抵抗の低減が期待できると考え、表面を有機修飾した基板で同様の積層試料を用いた熱抵抗測定を行った。従来より、酸化物系の無機物の場合には、有機修飾（シランカップリング処理）により樹脂／無機物間の接着強度等の機械的特性を向上させたり、樹脂流動時やワニス中での有機／無機界面の親和性を高めて流動性を向上させる効果が知られているが、熱伝導性を向上させる効果に関してはそれだけを取り出して直接的に評価した事例は殆どない。本検討は、無機物表面の化学的修飾により、有機／無機界面の熱伝導性が改善されることを初めて実験的に検証した例であり、熱伝導性に関する有機表面修飾の重要性を示すものである。

### 2. 5. 1. 2. 3 有機－無機複合材料における界面熱抵抗の寄与

平板状の積層試料を用いた評価より界面熱抵抗が比較的大きいことはわかったが、これだけでは複合材中でどの程度全体の熱伝導性に寄与するかを定量的に判断するの

は難しい。そこで、球状フィラが樹脂中に分散された解析モデル<sup>2-5-1-2-1</sup>に当てはめ、複合材料中の界面熱抵抗の寄与の予測を試みた。界面熱抵抗あり／なしの両ケースについて所定の厚さの板材の熱抵抗を求め、両者の比較から界面熱抵抗の寄与を見積った。フィラ熱伝導率は高熱伝導フィラである AlN を適用する場合に期待できるフィラ熱伝導率の最大値を想定し、界面熱抵抗は上記実験で得られた値を用いた。界面熱抵抗あり／なしの比較より、フィラ体積分率 60vol% 時で、複合材の熱抵抗に対する界面熱抵抗の寄与は約 40% と非常に大きいことがわかった。実際の複合材料を想定した構造においても界面熱抵抗の寄与は無視できず、高熱伝導フィラを用いた複合材の開発においては界面熱抵抗の低減が必須であることがわかった。

#### 参考文献

2-5-1-2-1 R. Pal, et.al., *Mat. Sci. and Eng. A* 498 (2008) 135-141.

### 2. 5. 1. 3 界面制御による高熱伝導化

#### 2. 5. 1. 3. 1 封止材

半導体素子を封止する時のイメージを図 2.5.1.3-1 に示す。ペレット状にした封止材を金型に投入し、トランスファー成形により封止するのが一般的となっている。この際、流動性（主に粘度）が非常に重要となり、封止材粘度が高い場合は、充填不良が発生し易くなる。

また、半導体素子を封止する際、金線流れを抑える必要がある。金線は、半導体素子と外部装置の導通をとるためのものであり、直径 20  $\mu\text{m}$  以下が主流となっている。この金線流れを抑え、半導体素子を正常に動作させるためには、封止材の粘度が非常に重要となる。封止材粘度が高い場合、図 2.5.1.3-2 の様に、金線どうしが接触して導通不良になってしまう。

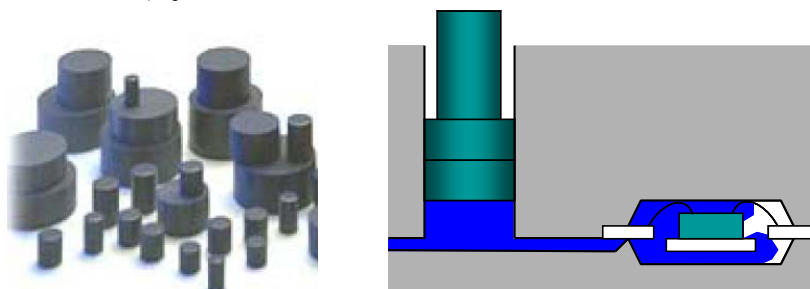


図 2.5.1.3-1 半導体素子を封止する時のイメージ

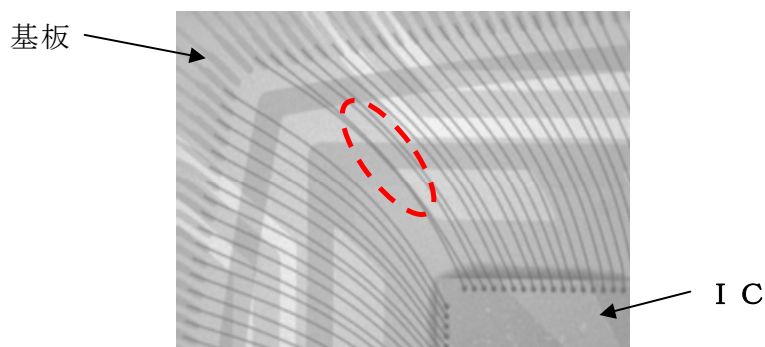


図 2.5.1.3-2 封止したパッケージの X 線透過写真

半導体封止用途での高熱伝導材料に関しては、表面修飾の粘度低減効果を利用し、粘度とのバランスをとりながら、フィラーの高充填化を行い、熱伝導率の向上を実現した。

### 2. 5. 1. 3. 2 高熱伝導性接着剤

高熱伝導性接着剤についても、加工性とのバランスは非常に重要である。接着剤はシリンジに入った状態で使用され、ディスペンサーを静置している時は液ダレを防ぐために、ある一定範囲の高粘度が必要となり、塗布している時（接着剤にせん断力がかかる場合）は「T a i l i n g（糸引き）」と呼ばれる加工性不具合を防止するため、低粘度であることが必要となる。このため、従来から使用しているミクロンサイズのA g 粒子に、A g（コア）と結晶性高分子（シェル）のコアシェル粒子（70～100nm）を併用することでA g 粒子の充填性を高め、熱伝導性と加工性の両立を実現した。

### 2. 5. 1. 4 界面制御及び外場を利用した構造制御

本研究では、高熱伝導性材料創製の為に、『粒子/樹脂界面の高度制御』に着眼し、以下の内容で検討を行った。

- a. 粒子表面修飾によるフォノン散乱の低減（界面抵抗の減少）
- b. 粒子表面修飾による成形性の向上（高充填化）
- c. 粒子表面修飾による粒子配向の高度制御化（高配向）

#### 2. 5. 1. 4. 1 高熱伝導性材料創製の指針

本研究の目標値と既存上市品（電気化学工業社製、放熱シート）との特性比較を図2.5.1.4-1に示す。熱伝導率が（中間）目標値30W/mKに対し、4W/mKと大幅な

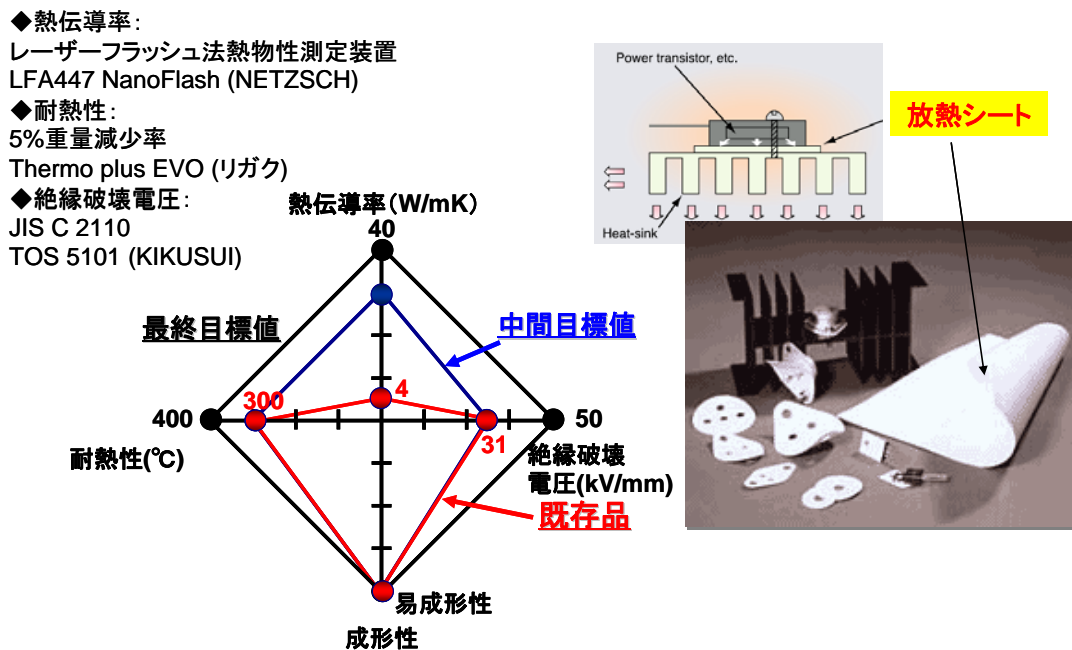


図 2. 5. 1. 4-1 既存品と研究目標値の比較

向上が必要とされる。また、絶縁強度及び耐熱性、易成形性は中間目標値相当である。よって、本研究では、中間目標値に対し、熱伝導率と相反機能とされる絶縁強度、易成形性の特性を維持しつつ熱伝導率を大幅に向上させることに注力し、検討を行った。

如何にして複合材料の高熱伝導化を達成するかにつき、下記に示す。粒子の形状及び材料内での向き（配向）を考慮した複合材料に関する熱伝導率の予測式が提案されている。この予測式に基づき、使用する高熱伝導フィラーの各パラメーターを導入しその値を求めた。本予測式より、より高い熱伝導度を有する材料を創製する為には、

- a. 熱伝導率の高いフィラーを配向させる技術
- b. 成形性を維持したまま高充填化させる技術
- c. アスペクト比の大きい粒子を創製し、高配向・高充填化させる技術

が必要であることが確認された。

#### 2. 5. 1. 4. 2 表面修飾による界面制御

本研究では、超臨界水熱合成プロセスによる高熱伝導フィラーの表面修飾を試みた。

超臨界水熱合成処理による表面改質を行った粒子を用い、成形性向上効果について確認を行った結果、未処理品と処理品による粘度測定にて、未処理品に対し 40%もの粘度低減効果が確認された。

この粘度低減効果により、従来では成形性の問題で困難であった、粒子の更なる高充填化が可能となることが期待される。

#### 2. 5. 1. 5 相分離を利用した構造制御

高い熱伝導性を実現するために最適な構造を計算により求めた。従来の熱伝導材料の構造は、熱伝導フィラーを樹脂中に分散させたものであるが、60W/mK の熱伝導性を示すフィラーを 50vol% 添加した場合においても、その分散系材料の熱伝導率はせいぜい 5W/mK 程度であることがわかる。一方、熱伝導性を有するパス構造を形成すると、60W/mK の熱伝導性を示すフィラーを用いた場合、フィラー充填率 45vol% で中間目標値の 30W/mK に達する。このように熱伝導パス構造は、高い熱伝導性を達成するためには極めて適した構造であることがわかる

#### 2. 5. 1. 6 まとめと今後の課題

以上で述べた開発成果のまとめを表 2. 5. 1. 6-1~3 に示す。パワーデバイス周辺材料については、中間目標の達成状況を図 2. 5. 1. 6-1 にもまとめて示した。数値目標の達成状況は順調である。但し、最終目標は、熱伝導性、耐熱性、絶縁性いずれについても更に高い目標を掲げており、今後もトレードオフの解消を図るべく、上述の開発コンセプトに沿った基盤技術確立、最終目標の達成、並びに実用材料の開発を目指した開発をユーザー企業との連携のもと、更に加速していく事とする。

表 2.5.1.6-1 成果のまとめ（中間目標）【パワーデバイス周辺材料】

検討項目	中間目標	最終目標	成果
熱伝導率	$\geq 30$ W/mK	$\geq 40$ W/mK	(//面) 35 W/mK (⊥面) 35 W/mK
耐熱性	$\geq 300$ °C	$\geq 400$ °C	300 °C
絶縁破壊電圧	$\geq 30$ kV/mm	$\geq 50$ kV/mm	25 kV/mm
成形性	易成形性	易成形性	易成形性

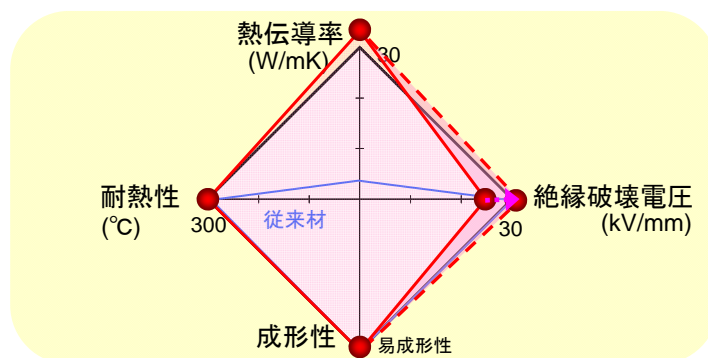


図 2.5.1.6-1 成果のまとめ（中間目標）【パワーデバイス周辺材料】

表 2.5.1.6-2 成果のまとめ（中間目標）【I Cパッケージ周辺材料/封止材】

検討項目	中間目標	最終目標	成果
熱伝導率	$\geq 7$ W/mK	$\geq 15$ W/mK	6 W/mK
密着強度 (260°C)	$\geq 1$ MPa	$\geq 1$ MPa	6MPa
体積抵抗率 (150°C)	$\geq 10^{11}$ Ω・cm	$\geq 10^{11}$ Ω・cm	$10^{14}$ Ω・cm

表 2.5.1.6-3 成果のまとめ（中間目標）【I Cパッケージ周辺材料/接着剤】

検討項目	中間目標	最終目標	成果
熱伝導率	$\geq 40$ W/mK	$\geq 60$ W/mK	38 W/mK
密着強度 (260°C)	$\geq 1$ MPa	$\geq 1$ MPa	4MPa

## 2.5.2 光学材料分野

### 2.5.2.1 開発コンセプトおよび開発の進め方

超ハイブリッド技術を光学材料分野に応用することにより、従来のプラスチック製光学材料を越え、『ガラス領域に迫る特性』を発現し、かつ『易加工性を維持』した新領域の光学材料を提供することを目指す。主な材料ターゲット領域としては、反射防止材料関連などの薄膜系光学材料およびレンズやLED封止剤などのバルク系光学材料などである。この事により、加工プロセスのエネルギー的負荷の大きな従来の光学ガラス材料分野においては、ある程度の材料代替が可能となると考えられる。更には価格面、光学特性面、加工特性面で既存材料では対応できなかった領域に対しても材料展開が可能となるため、新たな材料市場の形成も可能となると考えられる。これらの効果を、例えばLED封止材等へ応用展開し、LED照明等の本格普及に貢献する様なケースで試算した場合には、省エネ効果として原油換算259万KL/年、地球温暖化ガス排出削減効果として炭酸ガス679万t/年程度が最大で期待できると考えられる（図2.5.2-1）。

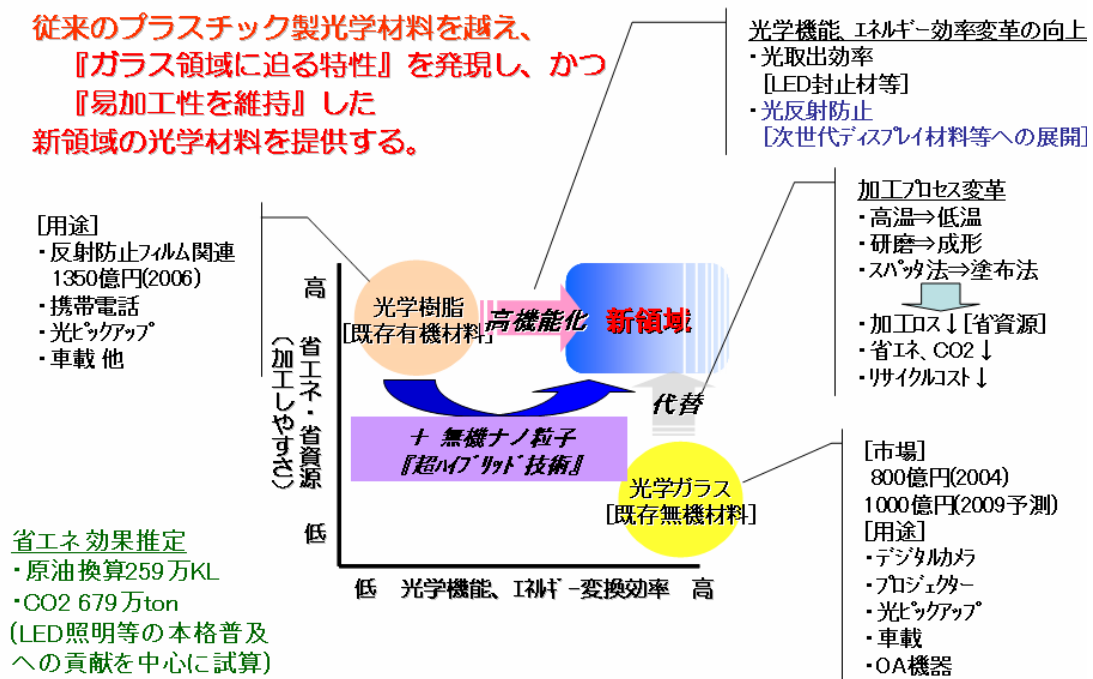
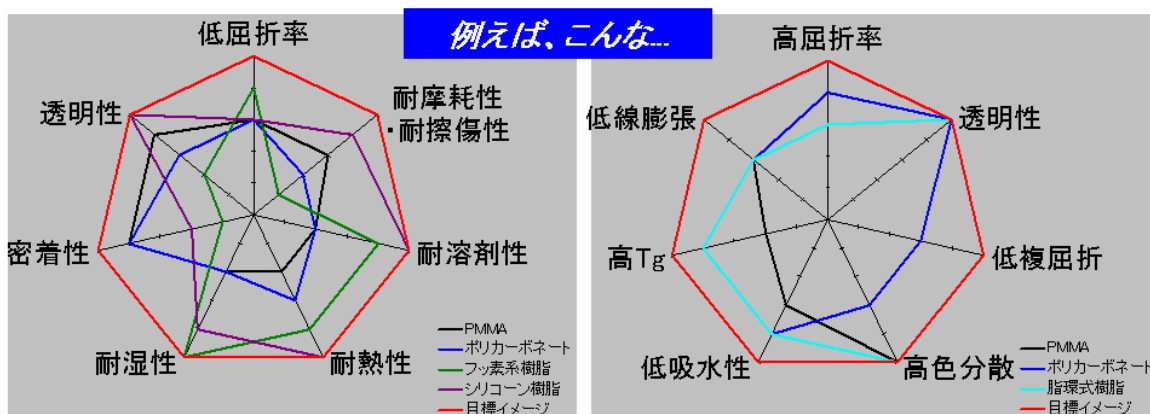


図 2.5.2-1 開発コンセプト

また各用途における材料特性に注目した場合には、既存の光学樹脂単独では達成が困難と思われる様な高次元での材料特性バランスの実現を目指す。この目的のためには、相反関係にある有機材料と無機材料の融合をナノレベルで達成する、全く新規な『超ハイブリッド材料』の材料としてのポテンシャルを検証しつつ、ユーザー企業との緊密な連携下で、実用的な観点に立った開発を推進するものである（図2.5.2-2）。

〔薄膜材料:フィルム、コーティング等〕

〔バルク材料:レンズ、封止材等〕



**超ハイブリッド技術 ⇒ 既存材料の欠点を克服した、バランス良い材料へ！**

図 2.5.2-2 開発目標イメージ

本件の様な光学用途を想定する場合に重要な観点は、各種特性値を満たしつつ光透過性を両立することであり、これらは図 2.5.2-3 に示す様な相反状態にあるといえる。この解消を図るために、『ナノ粒子と高分子間の分子レベルにおける親和性制御』に注目し、表面制御されたナノ粒子を『高濃度で完全分散させる』事を目指す。

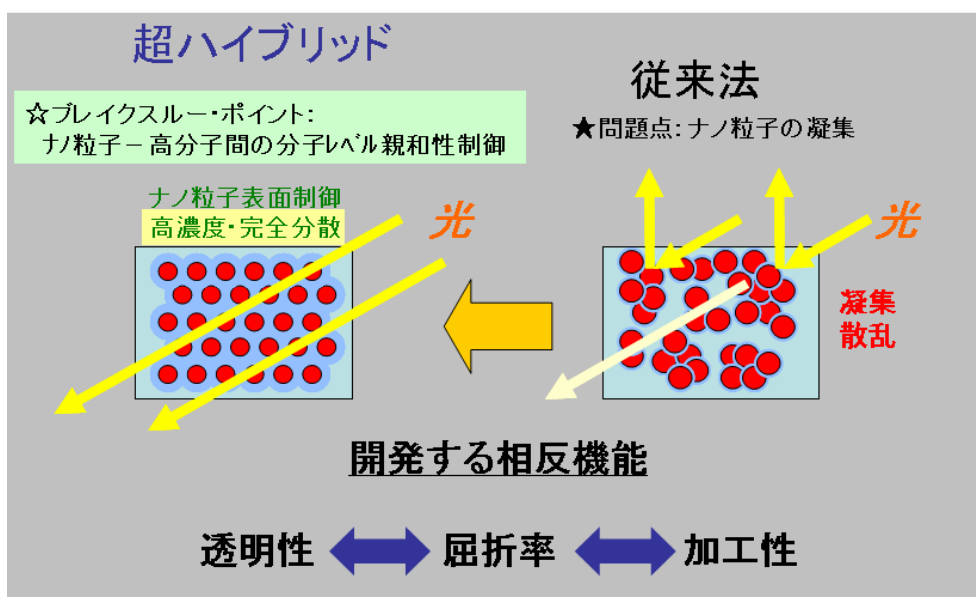


図 2.5.2-3 光学用途向けナノハイブリッド

具体的なアプローチ方法としては、参画団体の保有技術および保有材料をベースとして、以下の3点に焦点を当て、各技術間の統合や応用展開も視野に入れた開発を推進している(図 2.5.2-4)。

- a. 無機ナノ粒子と高い親和性を示すノニオン性高分子界面活性剤の開発
- b. 高屈折率樹脂および、樹脂と高屈折率ナノ粒子との相溶性を両立するための表面修飾



## 剤設計開発

### c. 新規重合プロセスによる透明性を確保した屈折率制御

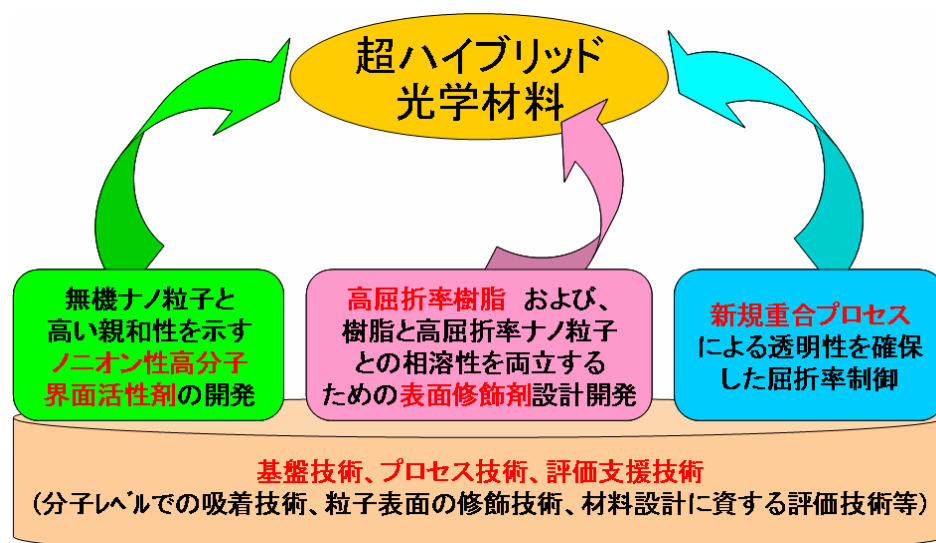


図 2.5.2-4 技術的アプローチ

### 2.5.2.2 無機ナノ粒子と高い親和性を示すノニオン性高分子界面活性剤の開発

#### (1) 概要

無機材料である光学ガラスは耐久性、信頼性に優れるが、高温（500～1000℃）での成形加工が必要である。また、光学ポリマーも、屈折率制御といった光学特性の面においては目標に到達しているが、耐久性において必ずしも満足すべき水準に達しておらず、これら要求性能を同時に満足する新規な光学材料開発が強く望まれている。

このような背景から、無機ナノ微粒子と有機ポリマーとのハイブリッド材料が広く検討されてきたが、透明性と光学特性（屈折率制御など）の両立、さらに耐久性、易加工性の実現はきわめて困難な技術課題であった。すなわち、ハイブリッド材料の屈折率を大きく変化させるためには、無機成分の微細化、高濃度での配合が必要であるが、これら方法では粒子の表面エネルギーを著しく増加させるため無機成分の凝集が生じ、透明な材料を得ることは困難であった。また、良好な分散性を得るために大量の分散剤や表面修飾剤を添加する手法があるが、この場合には最終製品の耐久性を著しく低下させる問題があった。そこで、このようなトレードオフを解消する手法として、図 2.5.2-5 に示す様な

Glyceryl-N-(2-methacryloyloxyethyl) urethane（以下 GLYMOU と略す）に代表される、無機粒子と極めて高い親和性を有するノニオン性高分子界面活性剤（光重合性モノマー及びそのポリマー）を利用してナノ粒子の均一分散を実現し、かつ高分子界面活性剤自身に架橋構造を導入することにより耐久性の向上を図った。GLYMOU は、分子内に 1 つの二重結合、2 つの水酸基とウレタン結合を有し、無機粒子と高い親和性を有しており、モノマーとナノ粒子を混合し光重合する光硬化法、あるいはポリマー化した GLYMOU をナノ粒子前駆体と混合し、加熱硬化させるゾルーゲル法のいずれでもハイブリッド材料を得ることが可

能である。

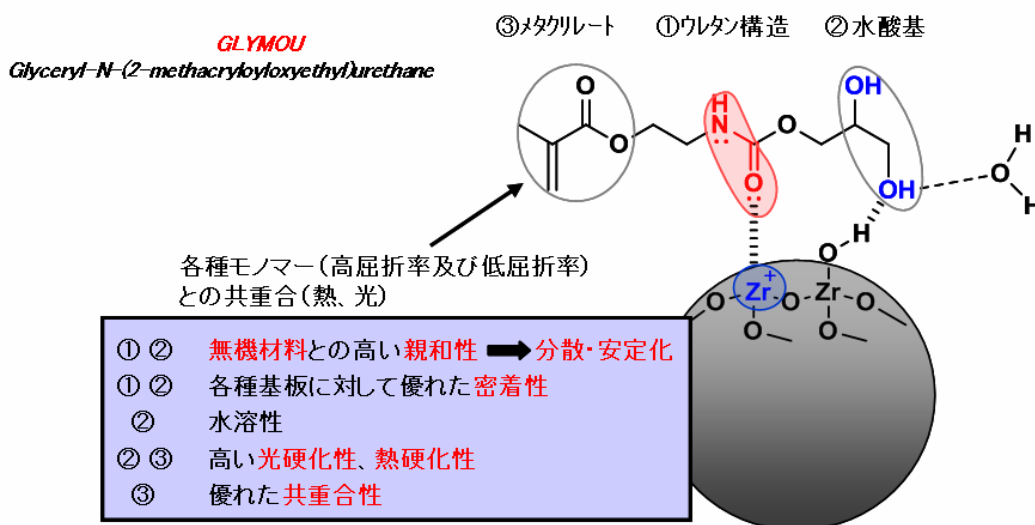


図 2.5.2-5 GLYMOU の特徴

#### （2）ナノ微粒子の高濃度分散

GLYMOU と市販無機ナノ微粒子（高屈折率材料：ジルコニア、低屈折率材料：中空シリカ）、架橋剤及び開始剤を用いてハイブリッド材料原料液を調製した後、スピコートで製膜し、UV 硬化を実施した。

ジルコニアを配合した有機・無機ハイブリッド膜と中空シリカを配合した有機・無機ハイブリッド膜のそれぞれにおいて、ナノ微粒子の凝集は認められず、高い光線透過率を示しており、GLYMOU によるナノ微粒子高濃度分散を確認することが出来た。

#### （3）ナノ微粒子分散性の評価手法確立

有機/無機ハイブリッド材料中の無機ナノ微粒子の分散状態を測定するため、小角 X 線回折（GISAXS）、TEM、固体 NMR、陽電子消滅法（産総研に依頼）を実施した。分析の結果、有機マトリックス中に無機ナノ微粒子が均一分散していることを確認することができ、これら分析手法を併用することで、ハイブリッド材料の分散性評価に適用できることが確認できた。

#### （4）超臨界水熱合成ジルコニアがハイブリッド膜の物性に及ぼす影響

高屈折用途向けの検討として、超臨界水熱合成プロセスで合成したジルコニアナノ粒子を用いて、有機・無機ハイブリッド膜の作製を検討した。

ジルコニア濃度の増加に伴うハイブリッド膜の屈折率改善が認められたが、ジルコニア高濃度領域では理論値（理論屈折率）との乖離を生じた。この原因を調べるため、TEM による断面観察、陽電子消滅法による空隙測定を実施（産総研）したところ、市販のジルコニアを用いたハイブリッド膜と比べて、超臨界水熱合成品を用いたハイブリッド膜では大きな空隙を生じていることが確認できた。超臨界水熱合成品には材質腐食由来の金属成分が多量に溶存しているため、これが有機マトリックスを分解して空隙を生じたと推測され

る。今後は空隙生成機構に関して精査を進めて行くことが必要であると言える。

#### (5) 低屈組成の最適化（配合組成が膜物性に及ぼす影響）

低屈折用途向けの検討として、低屈組成の最適化を図るため、ナノインデントを用いて中空シリカ含有率がハイブリッド膜の物性（強度）に及ぼす影響を調べた。装置は TS-70 TriboScope を使用し、試料は Si 基板上のハイブリッド膜（中空シリカ/GLYMOU/架橋剤）、測定モードは Closed Loop（Force Control：押し込み荷重制御モード）である。ナノインデント測定の結果、屈折率と膜強度のバランスより、最適な中空シリカ含有率を選定することができた。

#### (6) 供試材の試作

今回開発した、高屈折率材料及び低屈折率材料を用いて試作した AR フィルムを以下に示す（図 2.5.2-6）。なお、本件に関しては特許 1 件の出願準備を進めている。



図 2.5.2-6 試作サンプル（AR フィルム）

### 2.5.2.3 高屈折率樹脂および、樹脂と高屈折率ナノ粒子との相溶性を両立するための表面修飾剤設計開発

無機ナノ粒子をマトリックス樹脂中に分散させることを目的に、無機粒子-表面修飾剤-樹脂からなる 3 元系ハイブリッドが広く検討されてきている。特に樹脂として既存製品の応用展開を志向する場合や、その延長線上として更なる樹脂部分の性能向上を目指す場合には重要な手法であると言える。この場合には、界面制御層である表面修飾剤の設計が重要なポイントである。

モデル修飾剤群を用いて構造活性相関データを採取することにより、分子設計上の基本的知見を蓄積してきている。この指針を基にして新規な表面修飾剤を考案し、MS 樹脂とのハイブリッド膜の光学特性を評価した。この新規表面修飾剤により表面修飾されたジル

コニア粒子は既存の修飾剤を使用した粒子に比べて、ハイブリッド膜の屈折率が格段に向上することがわかった。含量が約 40wt%の時には、屈折率の中間目標値である 1.6 を超える透明膜となる。

今後は分子設計指針の強化拡充を推進して修飾剤構造の最適化を図ると共に、より高屈折率が期待できるチタニア系への応用展開、高屈折率型高分子材料の新規開発を予定している。なお本件に関して特許 2 件の出願準備を進めている。

#### 2.5.2.4 新規重合プロセスによる透明性を確保した屈折率制御

##### (1) 概要

本アプローチで採用している重合プロセスにより、相分離を回避して透明性に優れた材料とすることが可能である。

最初の段階は、ビーズミルによるメカノケミカル反応を応用した表面修飾処理である。ビーズミルによる粒子分散モデル図を図 2.5.2-7 に示す。表面処理反応は、カップリング剤と無機ナノ粒子の混合物をジルコニアビーズで攪拌・解膠・分散させることにより行う。ミリング後、遠心分離を行って粗大粒子を除去することによって目的とする表面修飾後の無機ナノ粒子分散液を得る。

以降のハイブリッド材料の作製は、表面処理後の無機ナノ粒子に、エポキシ樹脂および硬化剤を添加し、加熱により溶媒を除去・硬化させることにより重合を完遂させるものである。

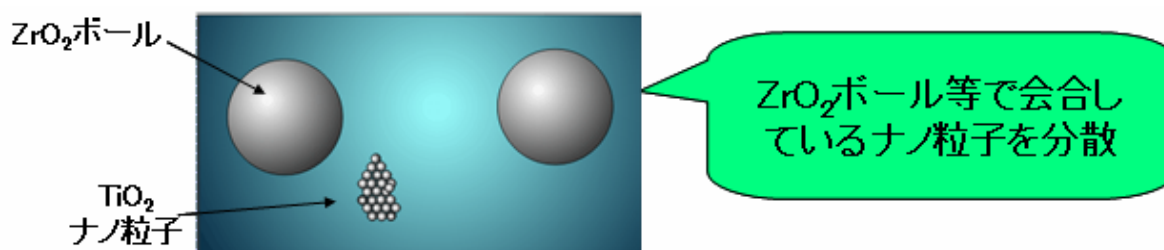


図 2.5.2-7 粒子分散モデル図

##### (2) アナターゼ型チタニアナノ粒子に表面処理結果

分散剤を添加した DMSO の混合溶媒にアナターゼ型チタニアナノ粒子とジルコニアビーズを添加し、会合したチタニアナノ粒子が解膠するミリング条件で攪拌・解膠・分散させることにより表面処理を行った。ミリング後、高速遠心分離を行って粗大粒子を除去することによって目的とする表面修飾後のアナターゼ型チタニアナノ粒子分散液を得た。その分散液は下図に示すように非常に良好な透明性を示した (図 2.5.2-8)。またこのメカノケミカルプロセスでは、従来手法に比較して少量の分散剤で十分な分散性を達成できることを同時に確認した。



図 2.5.2-8 表面修飾チタニアのトルエン分散液

### (3) ハイブリッド化の検討結果

上述の表面処理後のアナターゼ型チタニアナノ粒子をに分散させた後に、所定量のエポキシモノマーと硬化剤を添加し、溶媒留去および加熱して完全硬化させた。得られたハイブリッド材は高い透明性を示した。

ヘーズメーター（日本電色工業 NDH5000）を用いた全光線透過率の測定結果からは、目標としている 90%以上の全光透過率は確保されていることが確認されている。

さらに、屈折率測定装置（メトリコン Model2010）を用いて生成物の屈折率を測定した結果、屈折率が最終目標値を超える 1.78 に達することが確認された。

また、重合前ハイブリッド材料の成形性を MFR 測定機（CEAST 社 MFT）で測定した結果、目標とした 30g/10min 以上の成形性を持つことが確認された。

以上の結果から、本手法によるハイブリッド材料の有するポテンシャルの高さが確認できたと言え、本研究に関する特許を一件出願手続き中である。

今後はチタニアナノ粒子の分散性改善とあわせて、光触媒活性が低いとされるルチル型ナノチタニア粒子とのハイブリッド化の検討を予定している。

### (4) 供試材の試作

後段階重合時に型の中で硬化させることにより、目標とする直径 20mm 以上、厚さ 1mm 以上の供試物作製の検討を進めている。既に、組成条件や硬化条件等の基本条件は把握済みである。今後は、ハイブリッド材としての色調改善検討を進める事により、年度内に供試材を提供できる見込みである。

#### 2.5.2.5 まとめと今後の課題

以上で述べた開発成果の達成状況を表 2.5.2-1 に示す。数値目標の達成状況は順調である。従って、今後は既述の開発コンセプトに基づき、既存の光学樹脂単独では達成が困難と思われる様な高次元での材料特性バランスの実現を目指していく。この目的のためには、

相反関係にある有機材料と無機材料の融合をナノレベルで達成する、全く新規な『超ハイブリッド材料』の材料としてのポテンシャルを検証しつつ、ユーザー企業との緊密な連携下で、実用的な観点に立った開発を更に加速していく事とする。

表 2.5.2-1 達成状況

検討項目	中間目標	最終目標	成果	達成状況
低屈折率光学材料				
低屈折率	≦ 1.42	≦ 1.4	1.38 ~ 1.40	◎
鉛筆硬度	≧ 3H	≧ 4H	3H	◎
成形加工性 (MFR, JIS K7210)	≧ 10g/10min	≧ 30g/10min	≧ 30g/10min	◎
供試物作製			作製済 (ARフィルム)	◎
高屈折率光学材料				
高屈折率	≧ 1.6	≧ 1.7	1.78	◎
光線透過率	≧ 90%	≧ 90%	≧ 90%	◎
成形加工性 (MFR, JIS K7210)	≧ 10g/10min	≧ 30g/10min	≧ 30g/10min	◎
供試物作製			作製済 (20φ、t=1mm) (ARフィルム)	○ ◎

研究開発項目① 超ハイブリッド材料創製技術 まとめ

表 2.5.2-2 超ハイブリッド材料創製技術まとめ

中間目標 の達成度	電気・電子材料分野：中間目標値達成 光学材料分野：中間目標値達成 ユーザー企業等との連携により実用化課題に対応する。				
成果の意義	* フレキシブル加工性の高い高熱伝導材料開発は世界最高 * 屈折率を合目的的に制御できる光学材料開発技術を確保				
知的財産権 の取得	7件 (5件出願準備中)				
成果の普及	論文及び 国際学会発表 29	国内学会発表 9	新聞雑誌 0	国際学会 招待講演 (国内) 0	展示会 13
成果の最終 目標の達成 可能性	電気・電子材料分野：フィラー界面制御技術向上により高熱伝導率 絶縁破壊電圧を耐熱樹脂適応による高耐熱性をクリアする。 光学材料分野：総合光学特性を向上させ実用化課題を解決する。				

### Ⅲ. 研究開発成果について

#### 3. 研究開発項目毎の成果（三菱化学㈱・(独)産業技術総合研究所)

##### 3. 1 概要

近年の自動車用機器、情報・通信端末、ゲーム機、家電などの小型化、集積化の進展や自動車の環境負荷低減、燃費向上を目的としたHEVやEVなどの開発に伴い、用いられる電子チップやモーターなどの放熱を効率的に行うことが重要となってきており、それらは高熱伝導性とともにより電気絶縁性を同時に要求されている。一部の金属やセラミックスに匹敵する高熱伝導率を有する絶縁性の複合材料が開発されれば、その用途は一層拡大することが期待される（図3. 1-1）。

#### 自動車用機器、情報・通信端末、ゲーム機、家電などの高性能化 発熱部はチップ集積部、モーター部などに集中 電氣的な絶縁性・高い放熱を求める分野が増加

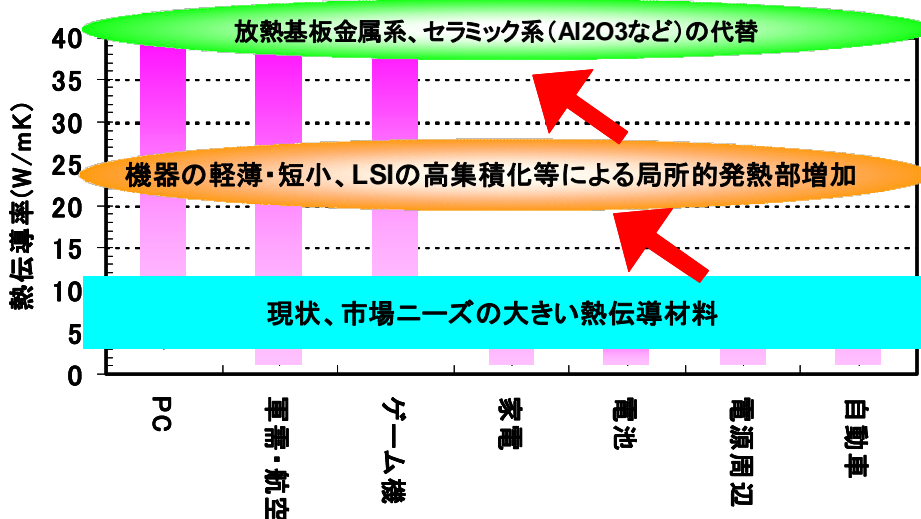


図3. 1-1 絶縁・放熱材料のニーズ

例えば、集積回路素子の放熱等に用いるシート状製品では、高熱伝導性や絶縁性という特性のほかに柔軟性が要求され、射出成形製品では高流動性、薄肉成形性、構造部材としての強度も要求される。また、セラミックス代替のような製品では、低線膨張係数であることが要求される（図3. 1-2）。

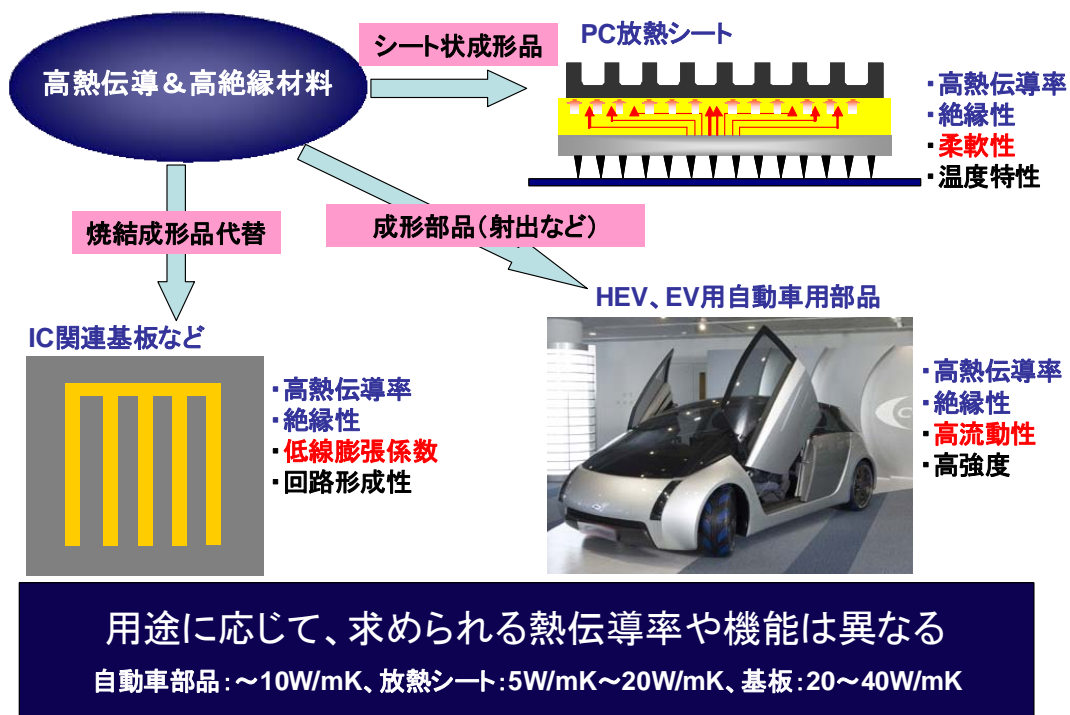


図3. 1-2 放熱材料の用途イメージ

要求される熱伝導率の範囲は様々であるが、同時に要求される柔軟性、成形性、強度などは、高熱伝導性を達成するためのフィラー高充填化に伴い低下することが多く、これらの相反する機能を両立することが必要となる。

複合材料で高熱伝導性を達成するためには、高熱伝導相をできるだけ連続させて熱伝導パスを形成させればよいが、単一の高熱伝導フィラーを充填するだけでは、低充填量ではフィラー同士の接触が少なく低熱伝導率であり、高熱伝導率にするために充填量を多くしようとしても充填量に限界（最密充填）があり、その付近では著しく流動性（成形性）が低下し、非常に加工しにくくなるという問題がある。そこで、我々は、高熱伝導ナノフィラーを用いて少量で熱伝導パスを形成（自己組織化、ハニカム状ネットワーク、配向制御等）させることにより、従来技術を上回る熱伝導率を低濃度で達成するという「低充填—高熱伝導」の戦略（コンセプト1）と、成形性を低下させることなく高充填化を図り、高熱伝導率を達成するという「高充填—高熱伝導」の戦略（コンセプト2）によって、相反機能を達成することを試みた（図3. 1-3）。



従来技術では、高熱伝導性と高流動性は相反する

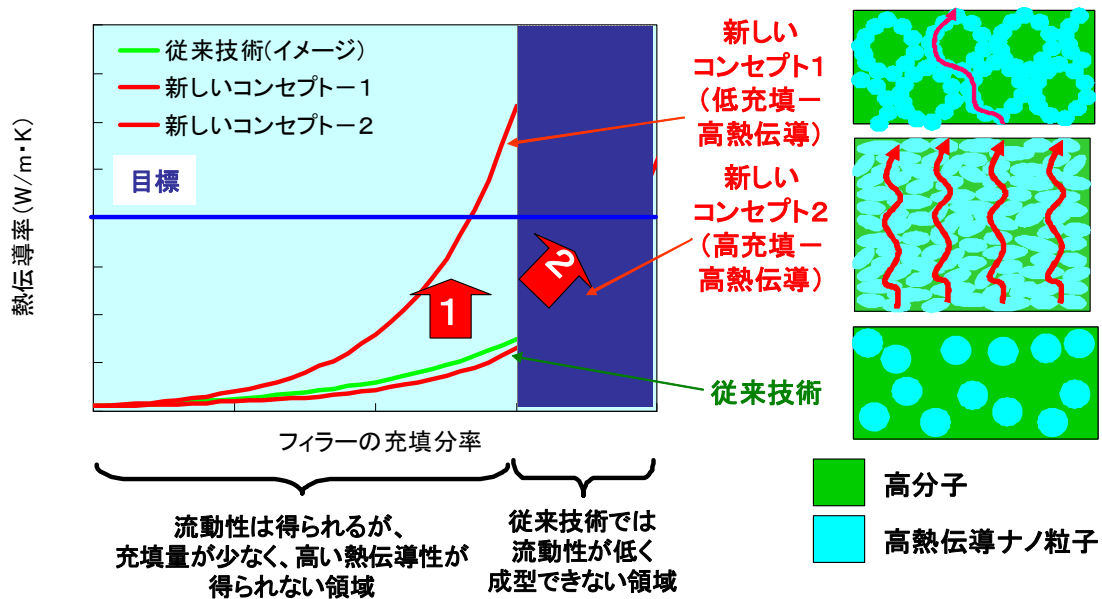


図3. 1-3 相反機能と従来技術の問題点

プロジェクトの推進に当たり設定した目標値は図3. 1-4の通りである。

金属チタン (~20W/m·K)、アルミナ (~40W/m·K) 程度の高熱伝導性を持ち、樹脂の電気絶縁性、成形性をあわせ持つ超ハイブリッド材料の開発を目指す。

	中間目標	最終目標
熱伝導率	≥ 20W/m·K	≥ 40W/m·K
粘度	≤ 1000 Pa·s	≤ 100 Pa·s
比重	≤ 3.5	≤ 2.5
耐衝撃強度	≥ 15 J/m	≥ 24 J/m
電気抵抗値	≥ 10 <sup>12</sup> Ω·cm	≥ 10 <sup>12</sup> Ω·cm

図3. 1-4 超ハイブリッド材料開発プロジェクト目標値

相反機能の達成のための、各基盤技術（材料技術、統合処理）と戦略との関係を図3. 1-5に示す。

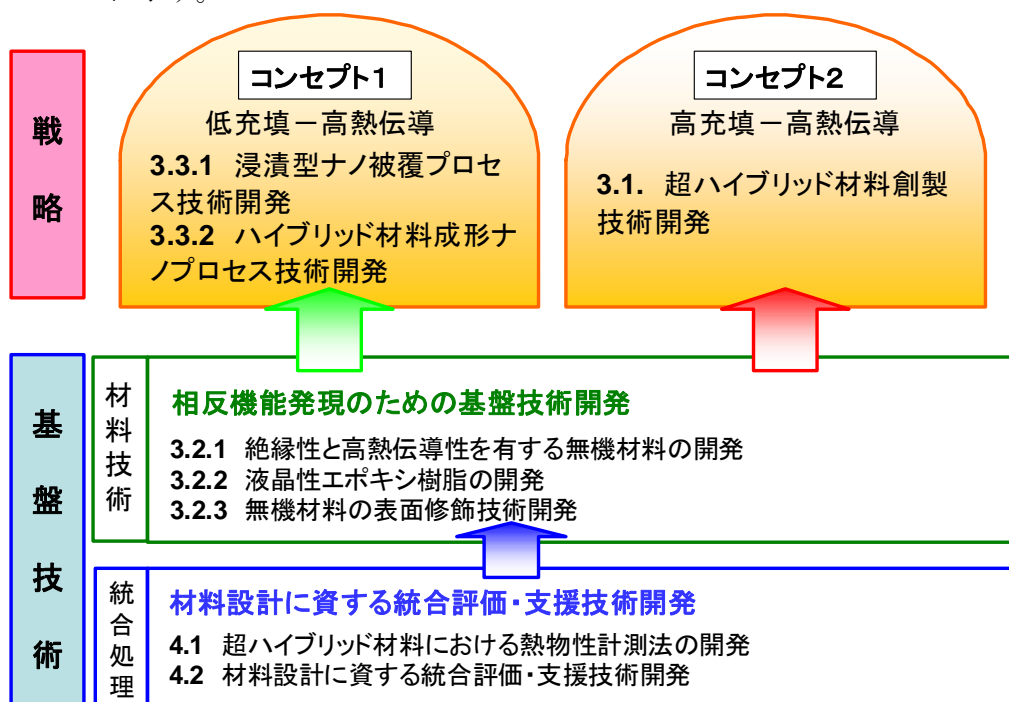


図3. 1-5 相反機能達成のための要素技術と戦略

また、相反機能発現のための基盤技術開発における構成要素のポイントを図3. 1-6に示す。

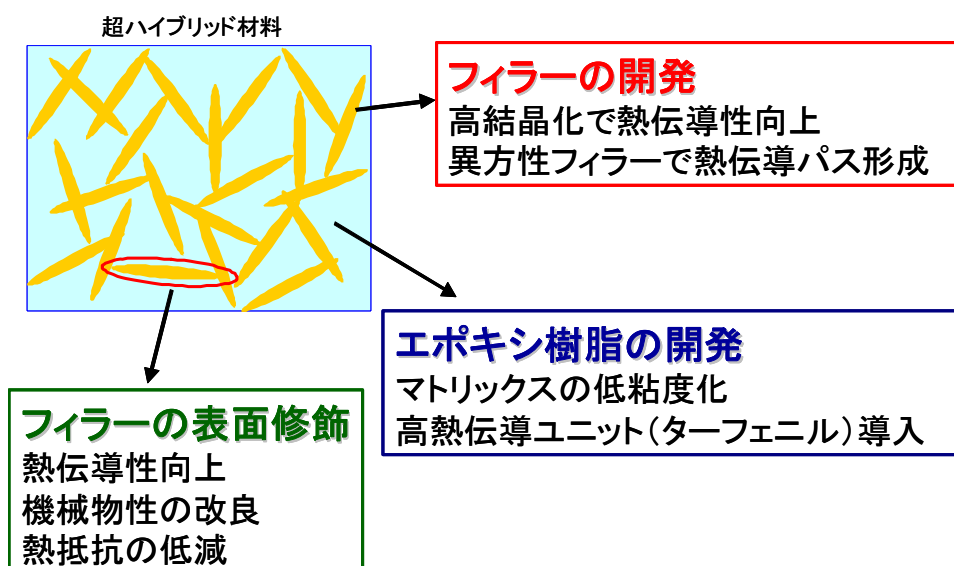


図3. 1-6 相反機能発現のための基盤技術開発におけるポイント

鋭意検討の結果、各物性項目は表3. 1-1に示すとおり、設定した中間目標値を達成した。また、各研究開発項目の成果をまとめたものを表3. 1-2～5に示す。詳細は次節以降に説明する。今後は中間目標達成の機構を解析して、最終目標値の達成に結び付けるとともに、開発された技術を広く展開することについても検討する。

表3. 1-1 中間評価までの目標達成状況

	中間目標	最終目標	現状-1	現状-2	中間目標達成度
熱伝導率 W/m・K	$\geq 20$	$\geq 40$	24	41	◎
粘度 Pa・s	$\leq 1,000$	$\leq 100$	170	450	◎
比重	$\leq 3.5$	$\leq 2.5$	1.8	1.9	◎
耐衝撃強度 J/m	$\geq 15$	$\geq 24$	22	33	◎
電気抵抗値 $\Omega \cdot \text{cm}$	$\geq 10^{12}$	$\geq 10^{12}$	$\geq 10^{14}$	$\geq 10^{14}$	◎

表3. 1-2 ②相反機能発現のための基盤技術開発の成果

研究開発項目	目標	成果	達成状況	コメント
②-1 絶縁性と高熱伝導性を有する無機ファイバーの開発	【中間目標】 ①BNナノ粒子、BNナノシートの合成条件確立。 ②表面修飾可能な非酸化物無機ナノ材料を開発。 ③電気絶縁表面被覆法の開発。 【最終目標】 無機ナノ材料について、高熱伝導を達成できる粒子の合成。	①高結晶高純度BNナノシートの合成に成功。 ②Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> ナノワイヤー合成に成功。 ③Agナノロッド、Auナノシートの合成に成功。AgナノロッドのTi(OiPr) <sub>4</sub> 絶縁被覆に成功。	○	窒化ケイ素ナノワイヤーの合成条件を確立し、ハイブリッド処理用試料を提供する。
②-2 液晶性エポキシ樹脂の開発	【中間目標】 高熱伝導で力学延伸や磁場配向に適した液晶性エポキシ樹脂の開発・合成を行う。 【最終目標】 メソゲン基配向を維持したまま成形性を改善した樹脂の開発。	・ドメイン高配向が可能な主鎖にターフェル骨格を有する液晶エポキシの合成に成功。 ・高配向と易成形性が期待されるターフェル型ツインメゲンエポキシの合成にも着手、高重合度のエポキシモノマー含有で液晶性発現を見出す。	◎	・ターフェル型エポキシにファイバーを複合化した系で磁場効果を検討。 ・ターフェル型ツインメゲンエポキシの大量合成プロセス検討。
②-3 無機ナノ粒子-樹脂ハイブリッド化技術開発	【中間目標】 無機ナノ粒子表面への官能基導入手法確立。 【最終目標】 官能基の効率的導入、ナノ粒子被覆樹脂粒子利用によりそのプロセス技術開発への適用。	・BN粒子表面へのエポキシ基含有鎖の導入条件確立。 ・BN粒子表面修飾により粘度低下、力学強度(引張剪断強度)向上、熱伝導率向上を確認。	◎	新しいコンセプト2のファイバーの崩壊現象を解析し、基盤技術として超ハイブリッド系レオロジーを掘り下げる。

表3. 1-3 ③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発の成果

研究開発項目	目標	成果	達成状況	コメント
③-1 浸漬型ナノ被覆プロセス技術開発	【中間】 ①液晶性エポキシ延伸紡糸の基礎検討と技術の見極め。 ②塗布性や接着性の確認および熱伝導率の見極め。 【最終目標】 樹脂表面にナノ粒子を均一かつ緻密に並べるナノ粒子被覆樹脂作製のプロセス技術を開発する。	①長さ378mのヒーターが必要(現実的に不可能)であること判明。 ②熱伝導率の目標値100W/mKに対して20W/mK程度の結果となった。	—	本検討項目は技術的難易度が非常に高いことを確認した。 技術推進会議(H20年12月25日)のコメントもあり、高充填-高熱伝導コンセプトに注力することとした。
③-2 ハイブリッド材料成型ナノプロセス技術開発	【中間目標】 ①ハニカム構造による熱伝導性改善効果を確認する。 ②市販材料を用い、成型プロセス側から高熱伝導性の検討を行う。 ③磁場発生装置を用い液晶エポキシ樹脂の基礎検討を行う。 【最終目標】 熱伝導に異方性のある放熱材料を開発する。	①表面修飾BN粒子被覆フェノール樹脂粒子のハニカム構造で熱伝導率2倍(35vol%時)。 ②櫛型構造型体で熱伝導制御の可能性を見出した。 ③液晶エポキシ樹脂の熱特性を磁場配向により評価し、約2倍の高熱伝導率化を達成。	◎	研究開発項目②で得た知見を融合し、レオロジー問題を解決して目標とする相反機能を満足した超ハイブリッド材料の試作品を開発する。

表3. 1-4 ④材料設計に資する統合評価・支援技術開発の成果

検討項目	目標	成果	達成状況	コメント
④-1 超ハイブリッド材料における熱物性計測法の開発	<p>【中間目標】</p> <p>①高熱伝導性ナノ粒子の<b>薄膜、粒子-樹脂複合構造の熱物性評価手法</b>を整備。</p> <p>②熱物性データを材料開発へとフィードバック。</p> <p>【最終目標】</p> <p>①ハイブリッド材料用熱物性分布計測技術の開発(既存装置の高度化)。</p> <p>②データを蓄積し研究開発項目④-2へ提供。</p>	<p>①<b>熱物性分布計測技術の高度化</b>を前倒しで着手した。</p> <p>②周期スポット加熱放射测温法により<b>ナノ粒子薄膜試料、ナノ粒子/樹脂繊維複合材料</b>の熱物性評価を実施した。</p>	◎	ナノ粒子薄膜の定量的評価結果に基づき、熱伝導性パス開発の方向性修正。 測定データは開発パートの方針決定の基準として活用。
④-2 材料設計に資する統合評価・支援技術開発	<p>【中間目標】</p> <p>①項目②、③の<b>微視的計測</b>を中心にして、<b>計測値を収集、解析、統合処理</b>を体系化を行う。</p> <p>②<b>巨視的評価手法の検討</b>を行う。</p> <p>【最終目標】</p> <p>①相反機能発現に関わる知識の体系化を行う。</p>	<p>①<b>産総研熱物性データベースを統合処理、体系化のフレームワーク</b>として試行導入し熱物性データなどを蓄積した。微視的解析では分子レベルでの考察を行い理論限界を解析した。</p> <p>②熱物性測定実データから、巨視的評価解析を試行し、高次の<b>ゆらぎ特性に系を特徴づける情報</b>が含まれる可能性を見出した。</p>	◎	ミリからマイクロ、ナノの多段階の材料スケールに対応したハイブリッド材料の機能評価測定データの蓄積を充実させる。 ゆらぎ解析などの手法材料機能評価基準を探索する。

表3. 1-5 ①超ハイブリッド材料創製技術開発の成果

研究開発項目	目標	成果	達成状況	コメント
①超ハイブリッド材料創製技術開発	<p>【中間目標】</p> <p>ユーザー候補企業等から、実用化するための課題に関する<b>情報を収集</b>し、金属チタン(～20W/m・K)程度の高熱伝導性と各目標値を達成する。</p> <p><b>熱伝導率≥20W/m・K</b> <b>粘度≤1000 Pa・s</b> <b>比重≤3.5</b> <b>衝撃強度≥15 J/m</b> <b>電気抵抗値≥10<sup>12</sup>Ω・cm</b></p> <p>【最終目標】</p> <p>アルミナ焼結体(～40W/m・K)程度の高熱伝導性を持ち、樹脂の電気絶縁性、成形性をあわせ持つ超ハイブリッド材料を開発し、各目標値を達成する。</p> <p>熱伝導率≥40W/m・K 粘度≤100 Pa・s 比重≤2.5 衝撃強度≥24 J/m 電気抵抗値≥10<sup>12</sup>Ω・cm</p>	<p><b>高充填-高熱伝導コンセプトに基づき中間目標を達成した。</b></p> <p>熱伝導率=24W/m・K 粘度=170Pa・s 比重=1.8 衝撃強度=22J/m 電気抵抗=10<sup>14</sup>Ω・cm</p> <p>家電メーカーA社に30W/m・Kのサンプルを持ち込み協議した。コスト重視でない、<b>全く新しい製品への搭載を継続して議論</b>することを確認した。</p> <p>家電メーカーB社より<b>熱伝導シート材</b>の照会があり、三菱化学グループ会社にて試作を検討することになった。</p> <p>顧客情報より、熱伝導部材は必ずしも厚さ方向のみの熱伝導性だけでないことが分かった。</p>	◎	熱伝導シート材料を試作し、顧客へサンプルワークを行うことで、熱伝導以外の要求性能を把握し、相反機能を解決するための基盤技術開発へ課題をフィードバックする。 超高熱伝導性部材のサンプルを試作し、主要顧客と情報交換を行い、具体的な新規用途を探索する。

### 3. 2 ②相反機能発現のための基盤技術開発

#### 3. 2. 1 絶縁性と高熱伝導性を有する無機材料の開発（大阪大学担当）

##### 3. 2. 1. 1 中間評価までの達成状況

無機材料が高熱伝導フィラーとしてポリマーに添加される場合、高熱伝導を達成するためには 40vol%以上の多量のフィラーが必要となる。そこで、より少量のフィラー添加量で高熱伝導性達成を発現させるために、高熱伝導フィラーとして知られている窒化ホウ素 (BN) ナノ粒子、ナノチューブの合成を検討した。その結果、コバルト (Co) を触媒として使用することで高結晶性の BN ナノ粒子の合成に成功している (図 3. 2. 1-1、図 3. 2. 1-2)。また、高熱伝導性ではあるが、導電性を有する金属ナノ粒子を合成し、その表面を絶縁被覆することで、絶縁性と高熱伝導性を達成する試みも行った。金属ナノ粒子としては、銀 (Ag) ナノロッド (図 3. 2. 1-3) および、コスト面でより実用的な銅 (Cu) ナノロッドを検討した。さらに、セラミックス系の熱伝導フィラーとして窒化ケイ素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) ナノワイヤーの合成についての検討も行った。Cu ナノロッドの合成条件は、Ag ナノロッドとは異なり容易にアスペクト比の大きなロッドを合成することはできなかったが (今後さらに最適化が必要である)、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  ナノワイヤーに関しては、一部合成条件の最適化が必要であるものの、実験室レベルでの合成法を見出した (図 3. 2. 1-4)。 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の表面層は Si-O になっており、シリカ粒子分散の知見を生かすことができるため、応用への障害が少ないことが期待される。現在、セラミックスの高熱伝導フィラーとしては、窒化アルミニウム (AlN) や窒化ホウ素 (BN) が用いられているが、高い異方性と熱伝導率を併せ持つ  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ナノワイヤーは AlN、BN の熱伝導率を損なうこと無く材料物性を向上できる可能性が高いと期待される。

導電性を有する金属ナノ材料の絶縁処理技術に関して、酸化チタン ( $\text{TiO}_2$ ) 被覆による絶縁処理技術も開発した。

## Coを触媒として高結晶性BNナノ粒子の合成に成功

BNの合成: Co触媒の添加効果 → ホウ酸 ( $H_3BO_3$ ) + 尿素 ( $NH_2CONH_2$ )

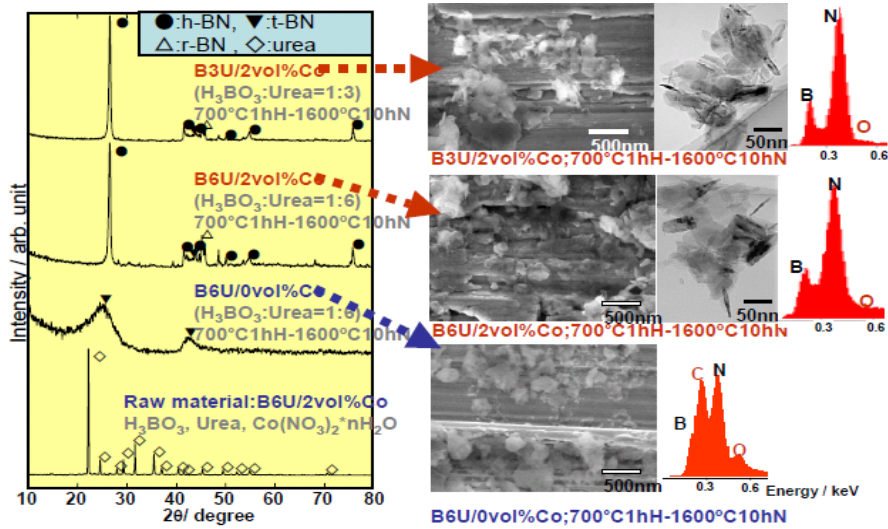


図 3. 2. 1 - 1 高結晶性 BN ナノ粒子の合成

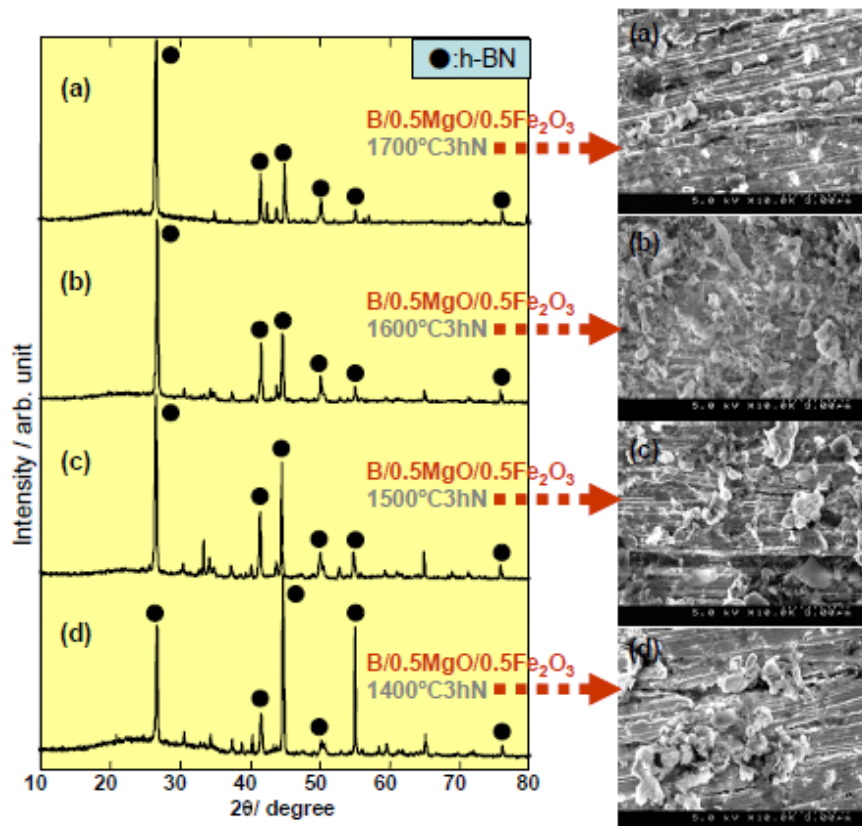


図 3. 2. 1 - 2 BN ナノチューブの合成

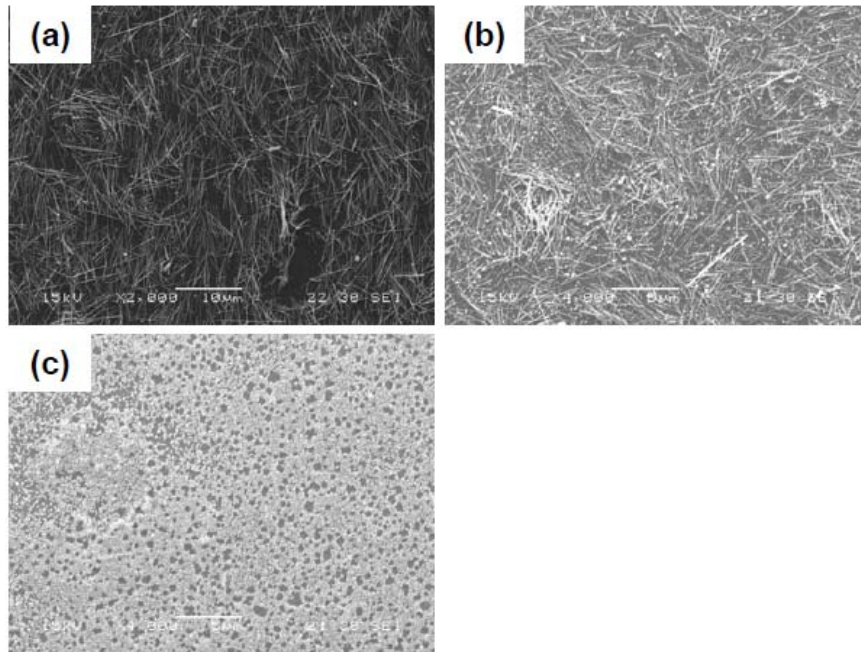


図3. 2. 1-3 ポリオール法により合成した Ag ナノロッドの電子顕微鏡写真

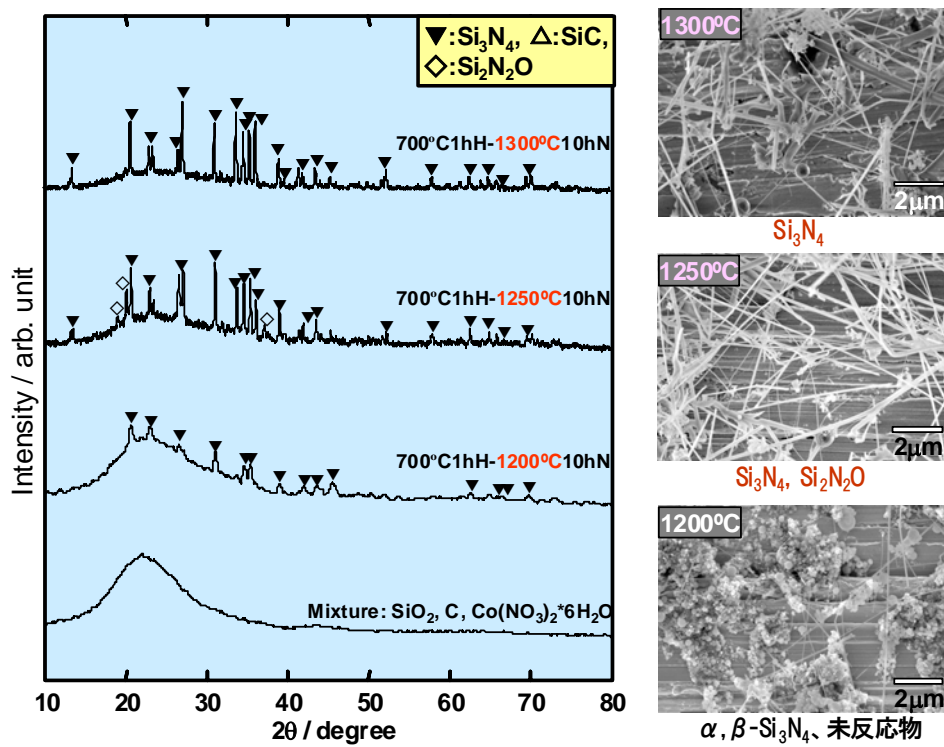


図3. 2. 1-4 窒化ケイ素ナノワイヤーの合成 (X線回折と電子顕微鏡写真)



### 3. 2. 1. 2 これまでの成果まとめ

#### BN ナノ粒子の合成

触媒として少量の Co を添加することで、ホウ酸と尿素から高結晶性の BN ナノ粒子の合成に成功した。

#### 金属ナノファイラー

- ・ Ag ナノロッドの合成および異方成長のメカニズムを解明した。
- ・ Ag ナノロッドの合成で得られた知見をもとに、Cu ナノロッドの合成を行ったが、ロッド状物質の収率が低く、更なる最適化検討が必要であることが判った。
- ・ チタン酸テトライソプロポキシドを添加したポリオール法を開発することにより、絶縁被覆 Ag ナノロッド (TiO<sub>2</sub> 被覆 Ag ナノロッド) の合成に成功した。

#### セラミックスファイラー

- ・ 触媒として少量のコバルトを添加し、1250°C、10 時間の熱処理の後、1400°C 熱処理を行うことで Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ナノワイヤーの合成に成功した。

### 3. 2. 1. 3 研究発表・講演、論文、特許等の状況

#### 研究発表・講演

1) Large-scale synthesis of micrometer-scale single-crystal gold nanosheets by polyol process

J. Jiu, K. Suganuma, K. Kim, T. Nemoto, R. Kozawa, and S. Isoda

2008 International Materials Research Conference, Chongqing, China, June 9 - 12, 2008

2) Synthesis of Ag nanorods and application to soft die attaching,

J. Jiu, K. Murai, K.S. Kim and K. Suganuma,

7th IEEE Conference on Polymers & Adhesives in Microelectronics & Photonics, Germany, August 17-20, 2008.

3) Preparation of Silver Nanorods: Affect of Additive Agent

Jinting Jiu, katsuaki Suganuma, Keunsoo Kim,

The 12<sup>th</sup> SANKEN International Symposium. Osaka, January 22, 2009

#### 論文

1) Preparation of Ag nanorods with high yield by polyol process

Jinting Jiu , Keiichi Murai, Doseop Kim, Keunsoo Kim, Katsuaki Suganuma

Materials Chemistry and Physics 114 (2009) 333–338

#### 特許等

なし

その他の公表（プレス発表等）

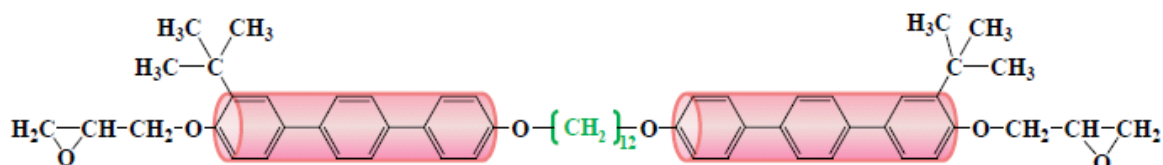
なし

### 3. 2. 2 液晶性エポキシ樹脂の開発（三菱化学、関西大学担当）

#### 3. 2. 2. 1 中間評価までの達成状況

既存の液晶性エポキシ樹脂の欠点であるシッフ塩基の加水分解性を改善するために、化学的に安定な構造をメソゲン基とする樹脂の合成を行った。その際に、柔軟鎖を導入することで低融点化を計り、分子量分布を有するエポキシ樹脂が得られた（図3. 2. 2-1）。合成により得られた中間体ジフェノールのエポキシ化生成物の GPC 測定を行った結果、最終生成物のピーク位置及びピーク面積比は原料である中間体ジフェノールとほぼ変化がないことが観察された。平均繰り返し単位数は、中間体ジフェノールと同様に分布を示し、それぞれ  $n=0.9, 0.3, 0.1$  となった。また FT-IR 測定を行ったところ、エポキシ化後、 $915\text{cm}^{-1}$  にエポキシ基に起因するピークが新たに観察された。また、 $1030\text{cm}^{-1}$  の芳香族エーテルに起因するピークの増加、 $3000\sim 3400\text{cm}^{-1}$  のヒドロキシル基に起因するピークの減少も観察された。このことから、エポキシ化は達成されたものと考えられる。

さらに、得られたエポキシ樹脂モノマーの熱的な挙動を把握するために、DSC 測定（図3. 2. 2-2）、偏光顕微鏡観察（図3. 2. 2-3）を行った。その結果、原料である中間体ジフェノールとアミンが当量系及び2倍量系のみ一部液晶相に起因すると考えられる複屈折パターンが観察され、4倍量系では全く観察されなかった。また、液晶相を一部示すと考えられる温度範囲においても、2倍量系が  $10^\circ\text{C}$  弱であったのに対し、当量系が約  $40^\circ\text{C}$  と差異が観察された。



## ターフェニル型ツインメソゲンエポキシの合成に成功

図3. 2. 2-1 合成したターフェニル型ツインメソゲンエポキシ樹脂

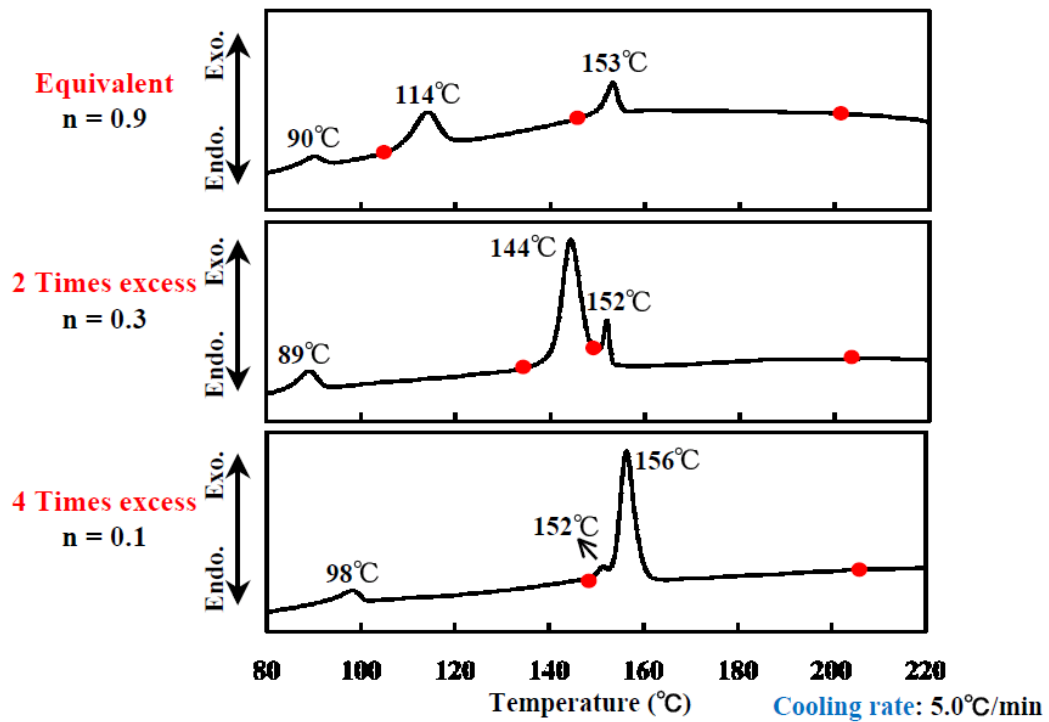


図 3. 2. 2-2 繰り返し単位数の異なるエポキシ樹脂の DSC チャート

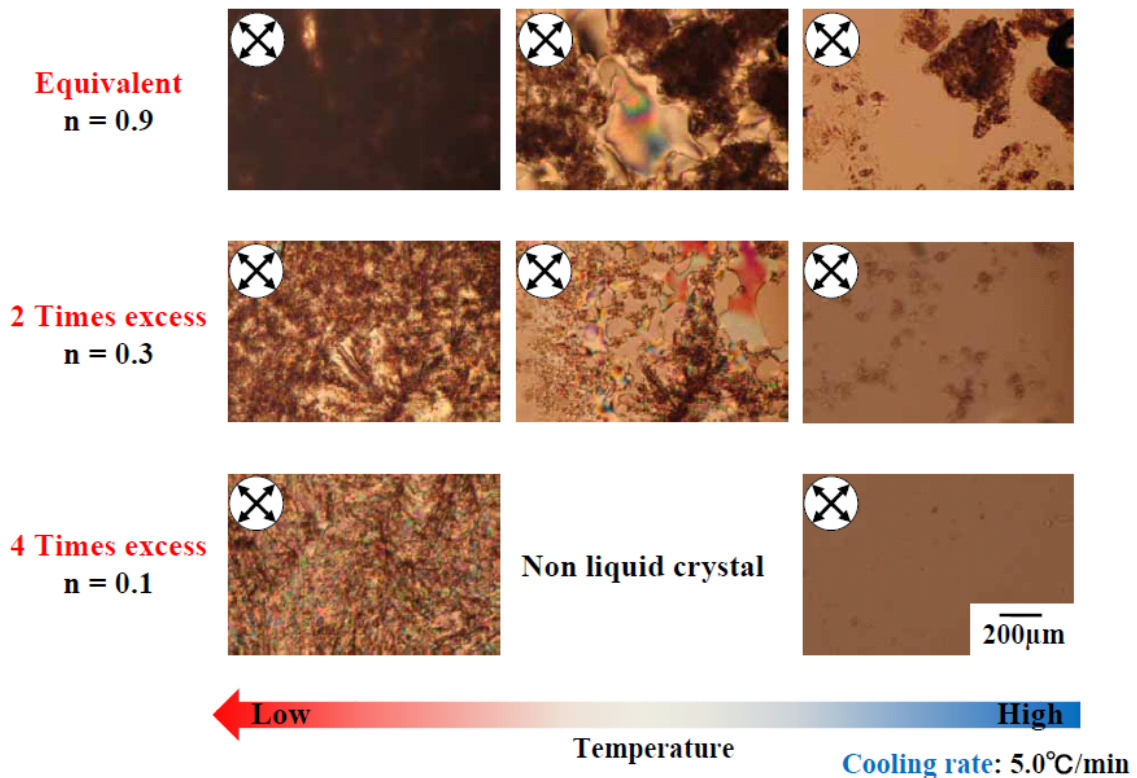


図 3. 2. 2-3 合成エポキシの液晶性

### 3. 2. 2. 2 これまでの成果まとめ

平成 20 年度は、昨年度合成方法を確立した液晶性エポキシ樹脂を用いた磁場配向制御と熱伝導性についての検討を行い、磁場印加によって高い熱伝導性を有する硬化物が調製

可能であることを明らかとした（3. 3 相反機能材料創製プロセス基盤技術開発の項参照）。

### 3. 2. 2. 3 研究発表、講演、論文、特許等の状況

#### 研究発表・講演

- 1) 原田美由紀、長沼香保里、松本真実、越智光一、第58回ネットワークポリマー講演討論会要旨集 p.269-270, 2008
- 2) 原田美由紀、○安藤純一郎、長沼香保里、越智光一、日本接着学会関西支部第4回若手研究者の会要旨集 P-4, 2008

#### 論文

なし

#### 特許等

なし

#### その他の公表（プレス発表等）

なし

### 3. 2. 3 無機材料の表面修飾技術開発（大阪市工研担当）

#### 3. 2. 3. 1 中間評価までの達成状況

無機ナノ粒子表面を修飾することにより、

- a. 無機粒子の2次凝集抑制による粘度低下
- b. 樹脂と反応（相互作用）する官能基の導入による力学強度の向上
- c. フィラー間のフォノン伝導性向上による熱伝導率の向上

などの作用や効果が期待できると考え、その検証を行うための修飾条件の検討を行った。

官能基を有する有機鎖で粒子表面を修飾するための条件を確立した。また、修飾粒子を含む樹脂複合材料を作製し、熔融粘度、力学的強度、熱伝導率において、表面修飾の効果があることを示した（図3. 2. 3. 1-1）。また、ハニカム構造形成に関して、有機フィラー表面への無機熱伝導フィラー粒子被覆処理を実施したが、処理時に熱伝導フィラー粒子が変質し、かつ成型時に被覆粒子間剥離が発生したためハニカム効果は確認できなかった。表面修飾した無機粒子で被覆した表面被覆熱伝導粒子を作製し、ハニカム構造を形成させることで低充填量では熱伝導率の改善効果があることがわかった。

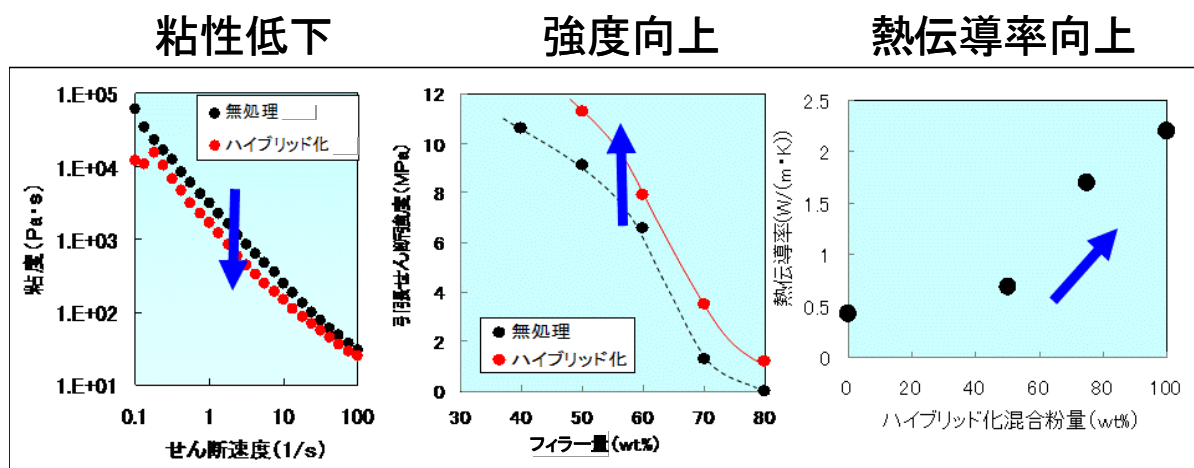


図3. 2. 3. 1-1 有機無機ハイブリッドの期待効果

#### 3. 2. 3. 2 これまでの成果まとめ

##### 粒子の表面修飾

無機ナノ粒子の表面を官能基含有の有機鎖で修飾するため、分散処理条件や表面修飾の反応条件を検討し、その表面修飾処方確立した。また、修飾粒子を用いて樹脂材料を作製し、力学的強度や熔融粘度において、表面修飾の効果があることを示すとともに、修飾粒子間に化学結合を形成することで熱伝導率も大きく向上することを示した。

##### ハニカム構造検証

無機ナノ粒子を用いてナノ粒子被覆樹脂粒子を作製、ハニカム構造を形成し、熱伝導性と構造の関係を調べた。表面処理をしていないBN被覆では、被覆時にBN粒子が変質し、かつ成型時に被覆粒子間に剥離が発生したため熱伝導率が低下、ハニカム構造の効果を確認

認できなかったが、表面修飾した粒子を用いた場合、低充填量域では熱伝導性向上に大きな効果があることがわかった。

### 3. 2. 3. 3 研究発表・講演、論文、特許等の状況

#### 研究発表・講演

- 1) 平野寛、長谷川喜一、上利泰幸、「熱分解 GC/MS を用いたシランカップリング剤処理の評価」、第 58 回ネットワークポリマー講演討論会、平成 20 年 10 月 9 日、合成樹脂工業協会
- 2) 上利泰幸、「複合高分子材料のフィルム面方向の有効熱拡散率の測定」、第 29 回日本熱物性シンポジウム、平成 20 年 10 月 10 日、日本熱物性学会
- 3) 加藤孝、永原孝俊、中村貴史、上利泰幸、越智光一、「重合性液晶材料 (PLCs) を利用したアクリル系配向フィルムの熱伝導特性」、第 29 回日本熱物性シンポジウム、平成 20 年 10 月 10 日、日本熱物性学会
- 4) 上利泰幸、「複合系高熱伝導性樹脂の現状」、第 36 期第 4 回特別講演会、平成 21 年 1 月 28 日、エポキシ樹脂協会
- 5) 上利泰幸、「新しい放熱材料の開発と熱伝導性の解析」、セミナー (放熱材料の設計と熱伝導フィラーの分散・充填技術とその評価)、平成 21 年 2 月 23 日、技術情報協会
- 6) 上利泰幸、「高熱伝導性プラスチックの開発とその現状」、第 232 回プラスチック技術講演会、平成 21 年 3 月 10 日、プラスチック技術協会

#### 論文

なし

#### 特許等

なし

#### その他の公表 (プレス発表等)

なし

### 3. 3 ③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発

#### 3. 3. 1 浸漬型ナノ被覆プロセス技術開発（三菱化学担当）

##### 3. 3. 1. 1 中間評価までの達成状況

エポキシ樹脂材料の延伸・紡糸技術について基礎検討を実施したが、安定的に繊維化することは極めて難しいことがわかった。このため、延伸紡糸エポキシ樹脂繊維の代替材料として、溶液紡糸の液晶性樹脂繊維および液晶性樹脂フィルムを用いた。これに窒化ホウ素微粒化フィラーでの塗布検討を実施し、各種フィルムで塗膜形成の条件探索を行った結果、樹脂繊維への被覆処理、被膜作製は可能であることを確認した。

平成 20 年度の研究において、2 次元窒化ホウ素（BN）ナノ粒子は単分散状態でディップ塗布することにより、基材表面に配向した連続膜を形成させることは可能であったが、BN ナノ粒子は極めて凝集力が強く、塗布可能な有機溶剤系において分散安定性を確保できる分散処方確立できなかった。

##### 3. 3. 1. 2 これまでの成果まとめ

エポキシ樹脂材料の延伸・紡糸技術について基礎検討<sup>1, 2)</sup>を実施したが、安定的に繊維化することは極めて難しいことがわかった。代替材料として、溶液紡糸の液晶性樹脂繊維と液晶性樹脂フィルムを用い、窒化ホウ素微粒化フィラーでの塗膜形成条件の探索を行った。現時点での最良塗布液にて樹脂繊維への被覆処理を実施し、被膜作成可能であることを確認した。

2 次元 BN ナノ粒子は単分散状態でディップ法により塗布することで、基材表面で配向した連続膜を形成させることは可能であることが判明したが、BN ナノ粒子は極めて凝集力が強く、検討した範疇においては塗布可能な有機溶剤系においては分散安定性を確保できる分散処方は確立できなかった。

エポキシ紡糸には長さ 378m のヒーターが必要（現実的に不可能）であること、BN 塗布繊維は熱伝導率の目標値 100W/(m・K)に対して、20 W/(m・K)程度であることを確認した。

##### 3. 3. 1. 3 研究発表、講演、論文、特許等の状況

###### 研究発表・講演

なし

###### 論文

なし

###### 特許等

なし

###### その他の公表（プレス発表等）

なし



### 3. 3. 2 ハイブリッド材料成形プロセス技術開発（油化電子、関西大学担当）

#### 3. 3. 2. 1 中間評価までの達成状況

##### a. ハニカム構造による熱伝導性改善効果の確認

ハニカム状モデル構造により、熱伝導フィラー含有量を低減化できる可能性があることが判った。これは、熱伝導フィラーのパーコレーションを低濃度で実現させていることによる。しかし、本研究にて目指している  $20\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$  以上の高熱伝導率を実現するためには、熱伝導フィラーの含有率をさらに上げる必要がある。このためには、ハニカム状構造のエポキシ樹脂+熱伝導フィラーの領域の熱伝導率を高くする必要があり、この領域の熱伝導フィラーの含有量を大幅に上げるか、熱伝導フィラーを高熱伝導化するなど、高熱伝導化の手法が必要である。

課題としては、高熱伝導化（熱伝導フィラーの高含有時）における効果確認の必要があるが、これには、加工性を考慮した改良が重要である。

##### b. 熱伝導パス形成基礎検討

成形品形状と熱伝導フィラー形状を組み合わせることで、熱伝導フィラーの配向を制御し、熱伝導性パスの方向を制御できる可能性があることが判った。

課題としては、本手法は、熱伝導率（熱伝導パス）の方向性を制御できるが、全体の熱伝導率を大幅に改善することはできないので、フィラーの熱伝導率、フィラー間接触熱抵抗、樹脂の熱伝導率などの改善が必要である。

##### c. 磁場発生装置の製作

磁場発生装置の設計・作製を行った。磁場測定を行い、設計仕様通りであることを確認した。

関西大学に設置し、液晶エポキシ樹脂の磁場中での配向硬化条件を最適化することで、液晶ドメインの高配向化とともに未配向硬化品と比較して約2倍の熱伝導率向上を達成した。

#### 3. 3. 2. 2 ハニカム状構造による熱伝導性改善効果の確認

熱伝導フィラーが存在する相を限定する（相分離構造効果、ハニカム状構造効果）ことにより、熱伝導フィラーの充填量見合いの熱伝導率を大きくすることができた。その結果を、図3. 3. 2. 2-1に示す。

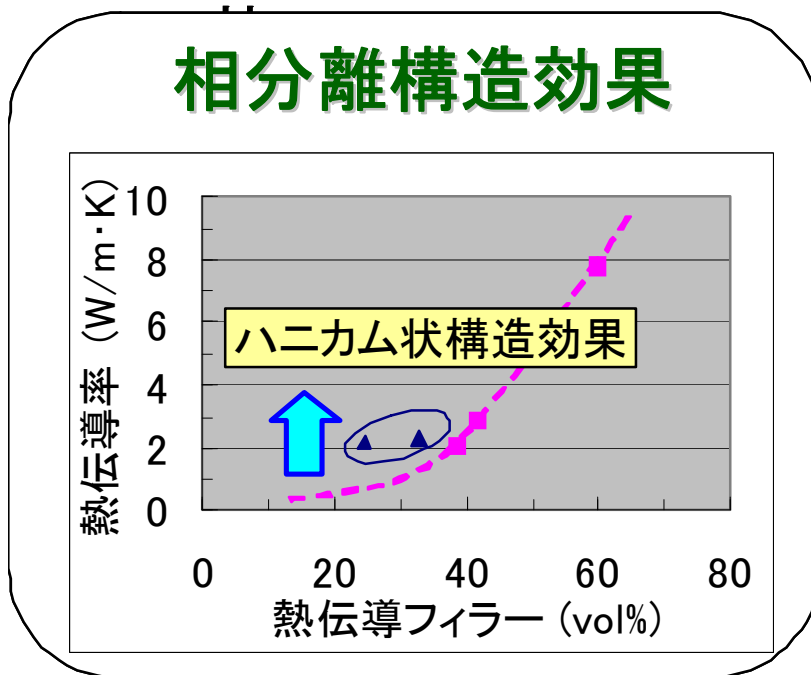


図 3. 3. 2. 2-1 相分離構造効果による熱伝導率の向上

### 3. 3. 2. 3 熱伝導性パス形成の基礎検討

耐熱性樹脂をマトリックスとし熱伝導フィラーを配合した系において、成形方法による構造制御の考え方の模式図とその結果を図 3. 3. 2. 3-1 に示す。厚さ方向の熱伝導特性が向上していることがわかる。

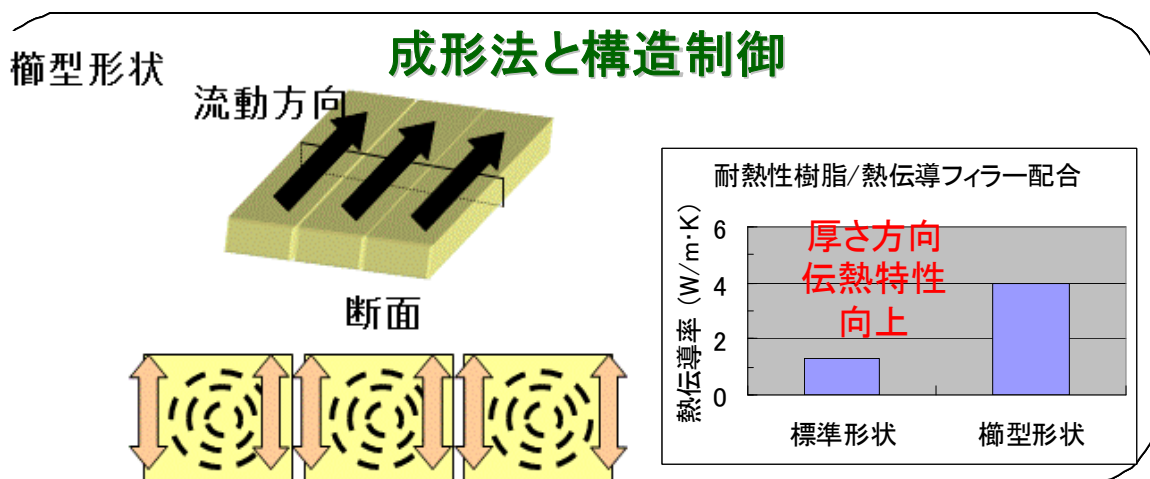


図 3. 3. 2. 3-1 成形法による構造制御と熱伝導率

### 3. 3. 2. 4 磁場発生装置の製作と磁場配向評価

本装置を関西大学に設置し、液晶エポキシ樹脂の磁場配向実験を行った。

## メチル分岐含有ターフェニル型液晶性エポキシ樹脂の磁場配向制御

### 硬化方法

(3-メチルターフェニルジグリシジルエーテル (DGETP-Me) /4,4'-ジアミノジフェニルメタン (DDM) の硬化)

DGETP-Me 2.0g ( $5.2 \times 10^{-3}$  mol) を 220°C に設定したホットプレート上で完全に溶融させた。これを 240、170、120°C に設定したホットプレート上へ移し、そこへ予め溶融させた化学当量の DDM 0.52 g ( $2.6 \times 10^{-3}$  mol) を加え、1 分間攪拌混合した。これを、それぞれ 240°C、170°C、120°C の恒温槽中で 10 分間硬化させた。

(磁場印加条件下における DGETP-Me/DDM 硬化)

上記と同様に、DGETP-Me 2.0g ( $5.2 \times 10^{-3}$  mol) を 220°C に設定したホットプレート上で完全に溶融させた。これを 240、200、170°C に設定したホットプレート上へ移し、そこへ予め溶融させた化学当量の DDM 0.52 g ( $2.6 \times 10^{-3}$  mol) を加え、1 分間攪拌混合した。これを、それぞれ 240、170、120°C に設定した磁場印加装置内で 5 分間硬化させた。また、磁場強度が 1T となるように設定した。

### 分析条件

(偏光顕微鏡観察)

相構造の観察は偏光顕微鏡(BH-2、OLYMPUS(株)製)を用いて行った。モノマーの液晶性の検討には、ホットステージ(TPC-2000、ULVAC(株)製)を用いた。観察条件は、倍率 200 倍(接眼レンズ 10 倍、対物レンズ 20 倍)もしくは 100 倍(接眼レンズ 10 倍、対物レンズ 10 倍)、昇温速度 5°C/min とした。硬化物の相構造の観察では硬化物を約 40 $\mu$ m に研磨し、観察サンプルとした。

(X 線回折測定)

硬化物の相構造の確認は X 線回折測定により行った。測定には、X 線回折装置 (NANO-Viewer MicroMax-007HF、Rigaku(株)製) 及びイメージングプレート (R-AXIS IV、Rigaku(株)製) を用いた。測定試料は厚さ 2.2 mm とし、Cu ( $k\alpha$ 、 $\lambda=1.54\text{\AA}$ ) ターゲットを用い、管電流 40 mA、管電圧 30 kV、測定範囲  $2\theta=0 \sim 25^\circ$ 、照射時間 5 min とした。なお、磁場印加系の X 線入射方向は磁場印加方向と垂直とした。

(熱拡散率測定)

硬化物の熱拡散率はレーザーフラッシュ法により測定した。サンプルサイズは直径 10mm、厚み 500 $\mu$ m とした。レーザー照射に伴う露光漏れをなくすため、両面にカーボンスプレー (グラファイトコート、日本船舶(有)) を噴霧し、室温で乾燥させた。熱拡散率測定にはレーザーフラッシュ法熱定数測定装置 (TC-7000 ULVAC-RIKO(株)製) を用いた。測定条件はレーザー照射波長 694.3nm、パルス幅 1ms、常温測定とした。また、磁場印加系の測定方向は、磁場印加方向と平行に測定を行った。熱拡散率は以下の式を用いて求めた。

$$\alpha = 0.1388 \cdot l^2/t_{1/2}$$

$\alpha$  : 熱拡散率 ( $\text{cm}^2/\text{s}$ )

$t_{1/2}$  : 試料表面の温度変化が半分に至るまでの時間 (ハーフタイム) (ms)

$l$  : 試料厚み (mm)

(熱伝導率の算出)

熱伝導率は、熱拡散率、比熱容量及び密度の積から算出した。

### 磁場印加による硬化物の配列構造の変化

それぞれの硬化条件で調製した硬化物の相構造について検討するため、XRD 測定を行った。その結果、240℃硬化系においては、ラウエ像は均一なデバイ環を示し、回折パターンは  $2\theta = 20^\circ$  付近のブロードなピークのみが観察された。さらに、方位角方向の測定ではピークが観察されなかった。これらのことから、240℃硬化系では、等方相硬化物が得られ、磁場印加の影響を受けていないと考えられる。これに対し、170℃、120℃硬化系においては、不均一なデバイ環の分布が観察された。特に 120℃硬化系では、低角度においてスメクチック相に起因するピークが観察された。これらのことから、170℃、120℃硬化系では、磁場印加方向と平行にメソゲン基が配列したネマチック相、または、スメクチック相のモノドメイン構造を形成した硬化物が得られたと考えられる (図 3. 3. 2. 4-1)。

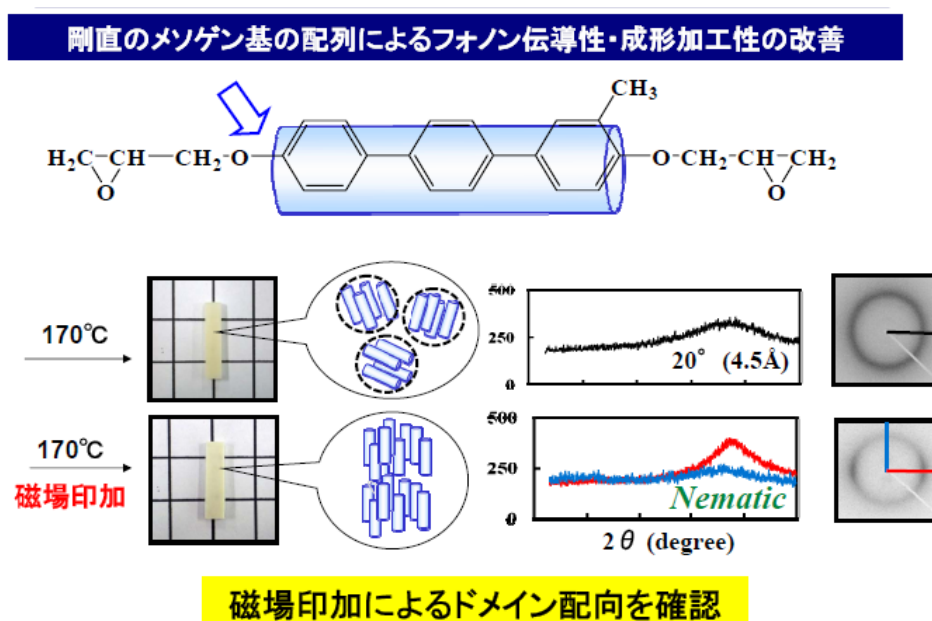
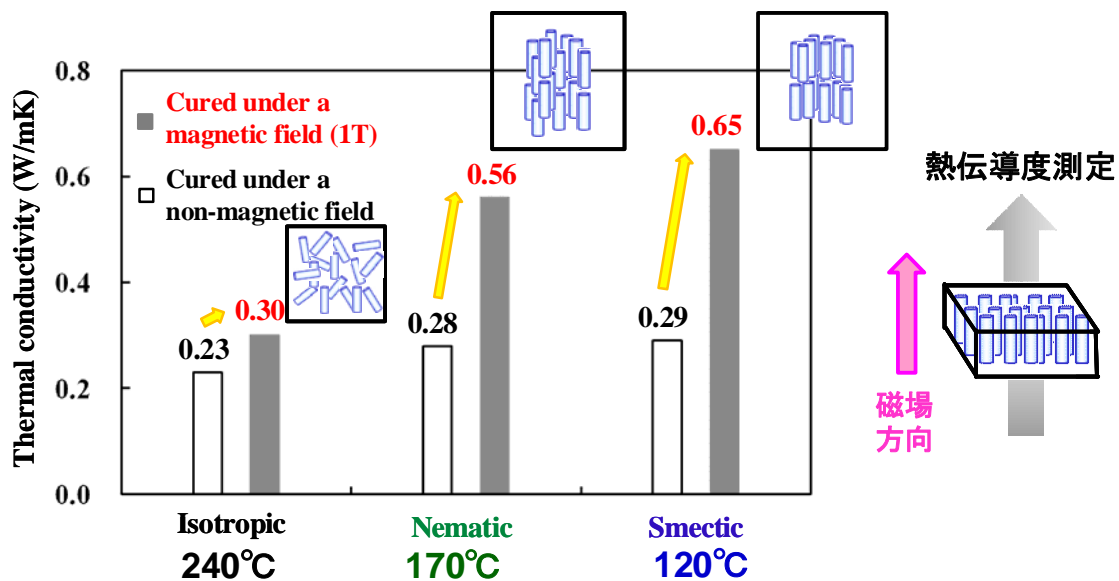


図 3. 3. 2. 4-1 ターフェニル型液晶性エポキシ樹脂の磁場中での配向硬化

また、方位角方向測定から配向度を算出した結果、170℃硬化系では 0.75、120℃硬化系では 0.55 となった。得られた硬化物の熱伝導率の測定を行い、ポリドメイン、モノドメイン構造の違いが与える影響について検討した。磁場印加なしの系では、等方相硬化物に比べ、ネマチック相、スメクチック相硬化物が僅かに高い値を示した。これは、ドメインを形成することで、熱の伝達経路が形成されたため、熱拡散率が向上したものと考えられる。一方、磁場印加系では、ネマチック相、スメクチック相の順にメソゲン基の配列性が向上するのに伴って高い熱伝導率を示した。モノドメイン構造を形成することで、ドメイン形成及びメソゲン基の配列性の影響が顕著に現れたものと考えられる。また、マクロに異方性を持つモノドメイン硬化物では分子鎖が一方向に配列することで、熱伝導経路が形成されたことで、より高い熱伝導性を示したと考えられる (図 3. 3. 2. 4-2)。



### 磁場配向により、熱伝導率が2倍以上に向上した

図 3. 3. 2. 4-2 ターフェニル型液晶性エポキシ樹脂の磁場配向硬化による熱伝導率の改善

#### 3. 3. 2. 5 これまでの成果まとめ

##### a. ハニカム状構造による熱伝導性改善効果の確認

ハニカム状構造モデルを作製し、標準構造と熱伝導特性を比較した。同じ熱伝導率を発現するのに、ハニカム状構造の方が、熱伝導フィラー含有量を少なくすることができることがわかった。

##### b. 熱伝導パス形成基礎検討

熱伝導フィラーの配向を制御することで、厚み方向に大幅に熱伝導率を改善できることが判った。

##### c. 磁場発生装置の製作と磁場配向評価

磁場発生装置の設計・作製を行った。磁場測定を行い、設計仕様通りであることを確認した。本装置を関西大学に設置し、液晶エポキシ樹脂の磁場配向実験を行った。液晶ドメインの高配向化が可能であり、磁場配向しない場合と比較して約2倍の熱伝導率改善を達成した。

#### 3. 3. 2. 6 研究発表、講演、文献、特許等の状況

##### 研究発表・講演

なし

##### 文献

なし

特許等

なし

その他の公表（プレス発表等）

なし

### 3. 4 ④材料設計に資する総合評価・支援技術開発

#### 3. 4. 1 超ハイブリッド材料における熱物性計測法の開発（産総研担当）

##### 3. 4. 1. 1 中間評価までの達成状況

薄膜および微小領域の熱物性計測手法に関する調査を行った。ナノ粒子から成る薄膜には、膜厚方向の評価には、パルス加熱サーモリフレクタンズ法が最適である。一方、面内方向にはスキヤニング・レーザー加熱 AC 法が適用できる。前者については産総研保有の装置であり、後者はアルバック理工社に試験を依頼できるため、必要に応じて使い分けながら評価することが可能である。

ハイブリッド材料の分布評価手法については、現時点では熱物性顕微鏡が唯一の手段である。本測定法では試料表面をあらかじめ平滑にしたうえで金属膜の被覆が必要であるが、ハイブリッド材料を加工することに問題はないと思われる。

開発パートによるハイブリッド材料の熱物性評価も担当し、開発ステージに対応した評価手法の調査を行い、その情報をもとに評価体制を整備し材料評価データの生産と開発パートへのフィードバックを行った。多数のナノ粒子薄膜サンプルの熱物性評価を実施した結果、評価データとしては高熱伝導性が得られなかったが、正しい評価結果を開発パートへと直ちに提供することで開発方針の転換と評価結果が役立てられた。

##### 3. 4. 1. 2 ハイブリッド材料評価のための微小領域および薄膜の熱物性測定法の調査

AIST では各段階における材料の熱伝導性評価を担当し、それぞれの段階に対して最適な計測評価手法を用いて材料評価を進めるが、評価開始に先立ち計測技術の調査と検討を行う。ナノ粒子を配列した薄膜の熱伝導性評価では、高熱伝導性を確保するための基準となるものであり、定量的な薄膜の熱物性評価技術が必要である。一方、ハイブリッド化後の材料評価については、微小領域の熱物性計測技術とバルクの熱物性技術の両面からの評価が有望である。

#### 薄膜の評価技術調査

##### a. $3\omega$ 法 ( $2\omega$ 法)<sup>1)</sup>

$3\omega$  法は、図 3. 4. 1. 2-1 のように測定対象の非導電性薄膜の表面に金属細線パターンを形成し、角周波数  $\omega$  ( $=2\pi f$ ,  $f$  は周波数) の電流を流してジュール加熱した際の細線の温度変化 (交流温度) を測定して熱伝導率を求める手法である。ここで、細線はヒーターであるとともに抵抗の温度係数を用いた温度センサーを兼ねている。細線へ加えた角周波数  $\omega$  の交流電流によるジュール熱は角周波数  $2\omega$  で振動することから、細線温度の上昇に依存して細線の抵抗値も角周波数  $2\omega$  で変化する。このときの電圧の振動は角周波数  $\omega$  の交流電流と角周波数  $2\omega$  の抵抗成分の積で表せるので  $3\omega$  の成分が含まれる。薄膜の熱伝導率はこの  $3\omega$  の交流電圧振幅から算出する。基板のみの場合と薄膜を基板に作製した場合の 2 通りについて、細線の交流温度をそれぞれ  $\Delta T_s$ 、 $\Delta T_{s+f}$  とすると、薄膜の熱伝導率  $\lambda_f$  は以下で表される。

$$\lambda_f = \frac{Pd_f}{2b\{\Delta T_{s+f} - \Delta T_s\}} \quad (3.4.1.2-1)$$

ここで  $P$  は細線に印加される単位長さあたりの電力、 $d_f$  は薄膜の厚さ、 $2b$  は細線の幅である。それぞれの交流温度は、電圧変動の角周波数  $3\omega$  成分の振幅  $V_{3\omega}$  を求めることで以下のように表すことができる。

$$\Delta T = \frac{2V_{3\omega}}{\alpha I_0 R_0} \quad (3.4.1.2-2)$$

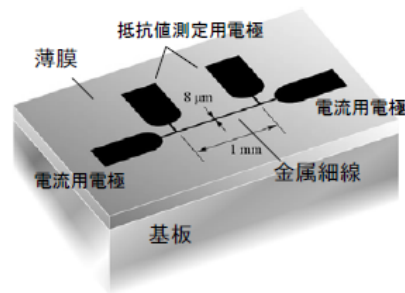


図 3. 4. 1. 2-1  $3\omega$  法の測定原理

ここで  $I_0$  は交流電流の振幅、 $R_0$  は基準温度における細線の抵抗値、 $\alpha$  は細線の抵抗の温度係数である。本測定は非導電性薄膜に対して有効な方法であり、NISTのFeldmannらによって執り行われたSi基板上のSiO<sub>2</sub> 薄膜の熱伝導率測定ラウンドロビンテストの結果（1997年の米国熱物性会議において発表）を踏まえてISO/TTA4:2002(E)<sup>2</sup>が作成された。しかしながら、標準規格として確立するに至らず、推奨測定法を提案するにとどまっている。本測定手法のナノ粒子薄膜の評価法としての適応判断について表 3. 4. 1. 2-1 に示す。



表 3. 4. 1. 2-1 3ω 法の適応判断

表④-1) - 1 3ω 法の適応判断		
項目	詳細	BN 粒子膜を想定した判定
測定物性	熱伝導率	○
熱物性の評価方向	膜厚方向	△ (熱伝導パスは薄膜面内方向)
測定対象の注意点①	電気伝導性を有しない薄膜	○
測定対象の注意点②	低熱伝導性の薄膜 (SiO <sub>2</sub> や Lowk など)	×
基板の制限	あり Si 基板	△
特記事項	東レリサーチセンター <sup>1)</sup> にて依頼試験実施されており、国内での実績多数。 試験片加工に時間と費用がかかり、多数の評価は困難。	

なお、近年アルバック理工社から 3ω 法を簡便にした 2ω 法が開発された。本測定法は基本的に 3ω 法と類似であり適応性については、表 3. 4. 1. 2-1 にならうものと考えられる。

b. スキャニング・レーザー加熱 AC 法<sup>4,5)</sup>

図 3. 4. 1. 2-2 のように、無限の長さかつ厚さが無視し得る短冊状薄板を、帯状のレーザー光により周波数  $f$  で周期的に加熱する。熱流は薄板を一次元的に伝播し、加熱位置からある距離  $X$  だけ離れた場所の温度を熱電対で測定する。ここで、 $k_a$  を温度応答の振幅成分の距離  $X$  に対する対数減衰率、 $k_p$  を同じく位相の変化率とすると試料面方向の熱拡散率  $\kappa$  は式 (3. 4. 1. 2-3) の関係で表される。ここで、 $l$  は熱拡散長である。

$$l = \sqrt{\frac{\pi f}{\kappa}} = \sqrt{k_a k_p} \quad (3. 4. 1. 2-3)$$

薄膜を測定する場合には、薄板の半面のみ成膜した試料を用意する。成膜領域と非成膜領域の見かけの熱拡散率をそれぞれ  $\kappa_f$  および  $\kappa_s$  とすると薄膜の熱伝導率は次の関係で求まる。

$$\lambda_f = a_s C_s \left\{ \frac{C_f}{C_s} + \left( 1 + \frac{d_s}{d_f} \right) \left( \frac{\kappa_f}{\kappa_s} - 1 \right) \right\} \quad (3. 4. 1. 2-4)$$

ここで、 $C_s$ 、 $C_f$ は基板と薄膜の体積あたりの比熱容量、 $d_s$ 、 $d_f$ は基板と薄膜の厚さである。

本測定法は、面内方向の熱拡散率を測定することを特徴とする。基本的には薄板またはフィルム状の試料を対象とするものであり、薄膜を測定する場合には専用のガラス基板上に成膜することが必要である。

表3.4.1.2-2に本測定法の適応判断について示す。

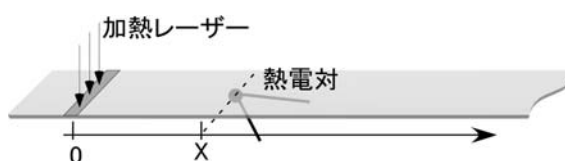


図3.4.1.2-2 スキャニング・レーザー加熱 AC 法の原理

表3.4.1.2-2 スキャニング・レーザー加熱 AC 法の適応判断

表④-1) -2 スキャニング・レーザー加熱 AC 法の適応判断		
項目	詳細	BN 粒子膜を想定した判定
測定物性	熱拡散率	○
熱物性の評価方向	面内方向	○ (熱伝導パスは薄膜面内方向)
測定対象の注意点	高熱伝導性の薄膜	○
基板の制限	あり 専用のマイクロシートガラス	△
特記事項	加熱位置と測温位置が離れているので、広い面積に均質な薄膜が作製されていることが必要。	△
総合判定	アルパック理工にて依頼試験受け付け。基板との比較測定であるため、検出感度がどのくらいであるかは未定。	△

c. パルス加熱サーモリフレクタンス法 (ピコ秒、ナノ秒サーモリフレクタンス法) <sup>6,7)</sup>

薄膜を超短パルスレーザーで瞬間的に加熱し、温度変化を別の測温パルス光のサーモリフレクタンス効果により測定する。薄膜内での熱拡散現象をそのまま測定するため、基板の影響を受けにくい。装置のセットアップは図3.4.1.2-3に示すように、加熱光と測温光を同一箇所照射して加熱後の温度減少を解析する表面加熱・表面測温型 <sup>8,9)</sup>と、加熱光を基板側から透過させて薄膜の裏面を加熱し、薄膜表面の温度上昇を測定する裏面

加熱表面測温型がある。過渡温度は、測温パルス光と加熱パルス光間の遅延を制御することで測定されるが、これはどちらかのパルス光の光路長さを可変とすればよい。表面加熱表面測温型サーモリフレクタンス法は米国で盛んであり、Maris、Cahillらのグループによりガリウムヒ素／アルミニウムヒ素（GaAs/AlAs）超格子薄膜<sup>10</sup>、窒化ガリウム（GaN）薄膜<sup>11</sup>、Low k膜<sup>12</sup>、光記録膜<sup>13</sup>などの測定がなされている。一方、裏面加熱表面測温型は産総研で開発された手法で、幾何学的配置がバルク材料の熱拡散率標準測定法のレーザーフラッシュ法と同一であることから、膜厚を代表長さとする熱拡散の特性時間と膜厚を用いて薄膜の熱拡散率を定量的に算出することができる<sup>14,15</sup>。現在、本手法による膜厚100nm前後の金属薄膜における熱拡散時間の標準供給が産業技術総合研究所からなされており<sup>16</sup>、加えて先端分野の薄膜材料<sup>17,18</sup>評価に供されている。

本測定法は、金属のサーモリフレクタンス現象を利用するため無機薄膜をそのまま測定することができない。無機薄膜を測定する場合には、通常金属膜により対象とする薄膜をサンドイッチし、3層膜構造の解析を行う<sup>19</sup>。

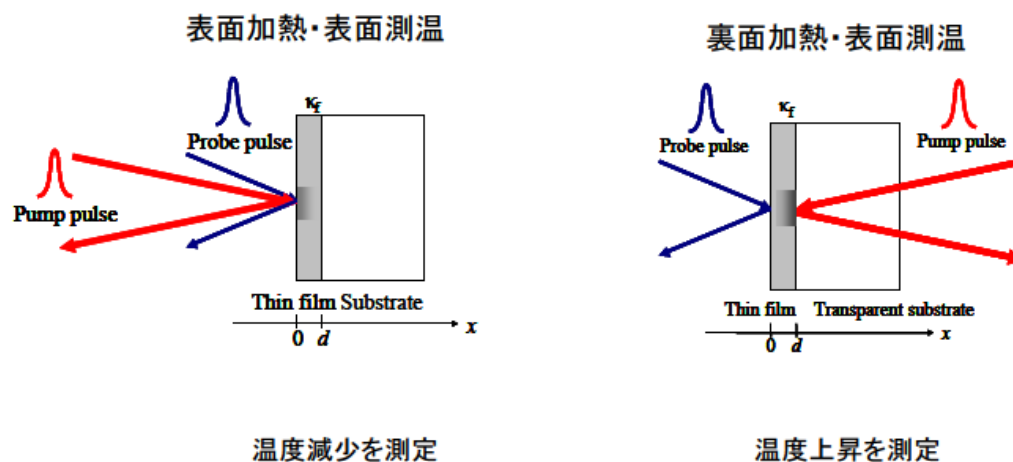


図3. 4. 1. 2-3 パルス加熱サーモリフレクタンス法の測定原理

表3. 4. 1. 2-3 パルス加熱サーモリフレクタンス法の適応判断

表④-1) - 3 パルス加熱サーモリフレクタンス法の適応判断		
項目	詳細	BN 粒子膜を想定した判定
測定物性	熱拡散率	○
熱物性の評価方向	膜厚方向	△ (熱伝導パスは薄膜面内方向)
測定対象の注意点	金属薄膜。金属以外の材料の場合は、金属反射層による3層構造を作成する。	△ (実質的に材料による制限はない)
基板の制限	裏面加熱・表面測温型の場合には透明な基板。表面加熱・表面測温型は基板を選ばない。	○
特記事項	膜厚範囲は 100nm～数 μm まで広範。唯一の絶対測定法である。	○
総合判定	産総研において、膜厚により複数の計測装置がある。熱伝導性による制限がない。	△

#### 微小領域の評価技術調査

微小領域の熱物性は、ナノ粒子をハイブリッド化した有機粒子や最終的な有機材料の熱物性の分布状況の評価に対して必要となる。各種の微小領域計測技術が存在するが、本プロジェクトにおける適応性としては、有機材料中の数 μm の高熱伝導領域の評価に用いることができるかが判断材料となる。

微小領域の熱物性を評価するためには基本的に領域に対応したプローブ（温度センサー）が必要となる。図3. 4. 1. 2-4に、現在微小領域計測技術で用いられているプローブの概要を説明する。熱電対や放射温度計はもっとも簡便に温度計測ができるが、計測領域のスケールとしては mm が一般的である。1 mm 以下の領域の温度（または温度変化）をスポット的に測定するには、光を温度プローブに用いることが行われる。このとき、温度検知の物理的原理としては物質のサーモリフレクタンス現象や、試料近傍の空気層の屈折率変化が利用される。光源としてはビームの指向性の高いレーザーが一般的である。光を利用したプローブでは光学的に集光が可能である 1μm 前後が限界である。それよりも小さい領域においては、AFM プローブに温度センサーを組み合わせたものや近接場光をプローブにした手法が開発されている。以下、各測定技術について報告する。

「応答」を測定するものは温度センサー。



微小領域の測定には、「微小なプローブ」が必要！

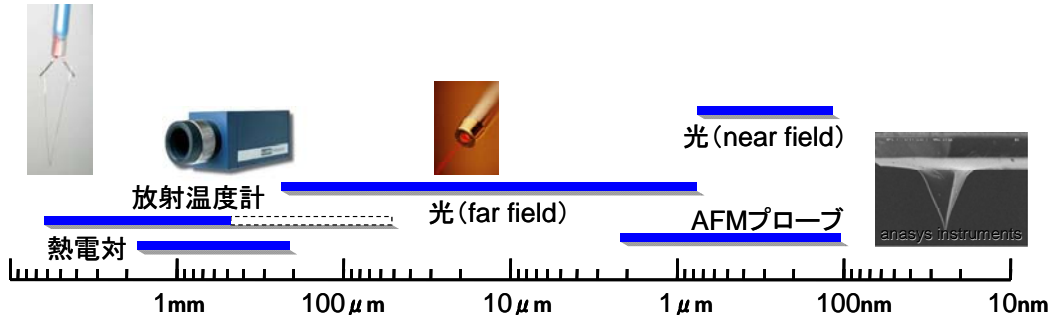


図3. 4. 1. 2-4 微小領域に用いられる温度測定プローブの種類

#### d. 熱物性顕微鏡

本測定法はレーザー光をプローブに用いて顕微鏡光学系により微小領域に焦点を絞ることで微細な熱物性の分布を測定する手法である。温度の検知はサーモリフレクタンス法により行い、そのため対象とする材料表面に金属の反射膜を施して測定する。被測定物に金属薄膜が施された図3. 4. 1. 2-5のようなモデルを考える。 $\kappa_f$ ,  $b_f$ ,  $d$  および  $b_s$  はそれぞれ、金属薄膜の熱拡散率、熱浸透率、膜厚および被測定物の熱浸透率である。表面に角周波数が  $\omega$  である正弦変調を受けた加熱光を照射すると、表面の温度応答は加熱光に対しある位相遅れを伴った周期的な応答を示す。周期加熱  $F(t)$ は次式により与えられるとする。

$$F(t) = \sin \omega t \quad (3. 4. 1. 2-5)$$

ここで、1次元的な熱拡散を仮定した場合、表面温度応答  $T(t)$ は以下のように表わされる<sup>20)</sup>。

$$T(t) = A \sin(\omega t - \delta) \quad (3. 4. 1. 2-6)$$

$$\delta = \frac{3}{4}\pi + \arctan \left( \frac{\cosh^2 \sqrt{\frac{\omega \tau_f}{2}}}{\cos^2 \sqrt{\frac{\omega \tau_f}{2}}} \times \frac{\left( \tanh \sqrt{\frac{\omega \tau_f}{2} + \beta} \right) \left( \tanh \sqrt{\frac{\omega \tau_f}{2} + \beta^{-1}} \right)}{(\beta - \beta^{-1}) \tan^2 \sqrt{\frac{\omega \tau_f}{2}}} \right) \quad (3. 4. 1. 2-7)$$

$$\tau_f = d^2 / \kappa_f \quad (3. 4. 1. 2-8)$$

$$\beta = b_s / b_f \quad (3. 4. 1. 2-9)$$

ここで、 $\delta$  は周期加熱に対する表面温度応答の位相遅れを表す。温度波の位相は、加熱

部に強度一定の検出光を照射し、金属薄膜の反射率変化を測定することで求めることができる。したがって、金属薄膜の膜厚および熱物性値が既知であれば、位相遅れ  $\delta$  から被測定物の熱浸透率を得ることができる。本測定法は産総研が保有しており、イットリウム・ホウ素・銅・酸素（YBCO）系超電導膜の熱特性分布評価<sup>21,22)</sup>の実績がある。

熱物性顕微鏡の適応判断を表3.4.1.2-4に示す。

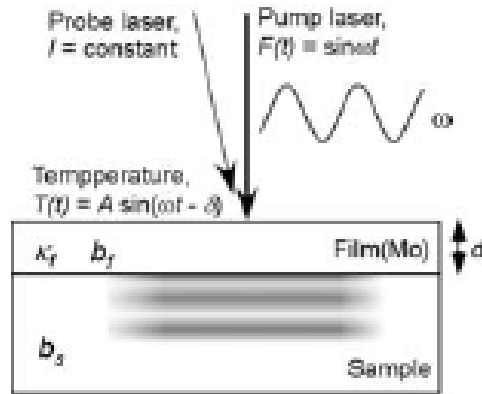


図3.4.1.2-5 熱物性顕微鏡の測定原理

表3.4.1.2-4 熱物性顕微鏡の適応判断

表④-1)-4 熱物性顕微鏡の適応判断		
項目	詳細	ハイブリッド材料の分布評価に対する判定
測定物性	熱浸透率	△（熱伝導率換算には比熱と密度の仮定が必要）
分解能	5μm 前後	○
測定対象の注意点	材料の表面は平滑であること。表面に金属膜のコーティングができること	△（材料加工が可能ならばよい）
定量性	基準となる材料との比較による。試料と同等の信頼性のある基準材料が用意できれば高い。	△
特記事項	微小領域測定で定量性が確保できる数少ない方法である。	○
総合判定	産総研において装置を保有。評価実績あり。	△

e. 近接場光プローブ

近接場光技術は、非接触で物質表面の微小領域を調べる新しい方法として近年脚光を浴びた。近接場光プローブにより物質表面を光学的に誘起し、局所的な光学情報を取り出すことができるため、従来の探針を用いた測定技術に比べて格段に情報量の多い測定ができると考えられた (図 3. 4. 1. 2-6、7)。近接場光プローブは波長よりも小さい開口を持つ光ファイバ先端から浸み出す近接場光 (伝播しない光電場) を利用する。この光は微弱であるが、開口径とほぼ同スケールの領域に存在し、距離の対数に反比例して減衰するため、微小プローブとしては最適である。米国では、およそ 10 年前に微細配線の温度分布の計測例<sup>23)</sup>が報告されており、国内では、慶応大のグループが温度測定の基本開発研究<sup>24)</sup>を進めている。本測定手法は高い可能性を有するが、定量性を確保した測定にまでこなれておらず、現時点では将来技術に留まる (表 3. 4. 1. 2-5)。

・小さい開口部を作成することで、波長よりも小さい光 (近接場光) のスポットを得ることができる。



近接場光は通常の光と異なり、  
 ・伝播しない  
 ・距離の  $1/e$  に比例して減衰

図 3. 4. 1. 2-6 近接場光の特徴

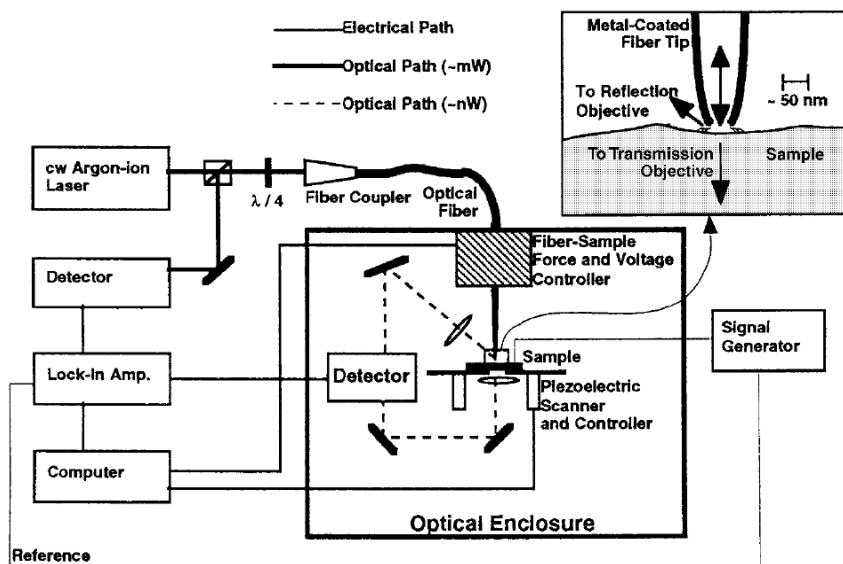


Figure 1. Schematic of the experimental apparatus and the tip-surface interaction region.

図 3. 4. 1. 2-7 近接場光プローブを用いた微小領域熱物性装置の原理図

表3. 4. 1. 2-5 近接場光プローブの適応判断

表④-1) - 5 近接場光プローブの適応判断		
項目	詳細	ハイブリッド材料の分布評価に対する判定
測定物性	温度測定	△ (物性値の算定には解析が必要)
分解能	1μm 以下	○
測定対象の注意点	現状は専用のサンプルに対して検証実験が行われている段階	×
定量性	検討中	×
特記事項	現時点では実用化されていない	×
総合判定		×

f. 熱顕微鏡 (SThM)

本測定技術は、ナノスケールの形状測定技術として広く普及している原子間力顕微鏡 (AFM) から派生した技術である。プローブにヒーターを兼用した熱電対を組み込み、微小領域の加熱とそのときの熱流測定を行う。現在は米国の Anasys Instruments 社が熱測定プローブの販売を行っている。本測定法の最も得意とする分野は、微小領域の熱分析 (融点、転移点測定) である。最新の分解能としては 100 nm オーダーとされており、定量性はないが熱伝導性イメージ像の習得も可能である。熱顕微鏡の適応判断を表3. 4. 1. 2-6に示す。



表 3. 4. 1. 2-6 熱顕微鏡 (SThM) の適応判断

表④-1) - 6 走査型熱顕微鏡 (SThM) の適応判断		
項目	詳細	ハイブリッド材料の分布評価に対する判定
測定物性	熱分析、熱伝導性	△ (基本的には融点や転移点の測定、熱伝導性イメージは定性的評価)
分解能	100 nm	○
測定対象の注意点	ポリマー系の測定が得意	○
定量性	定性測定	×
特記事項	微小領域の加熱 550℃まで可能	-
総合判定	東レリサーチセンターを始めとしていくつかの試験機関で依頼測定可。	×

### 3. 4. 1. 3 ナノ粒子薄膜の熱物性評価

#### ナノ粒子塗布膜の熱物性評価

平成 20 年度は、開発パートにおいて熱伝導パス形成を目的とした高熱伝導ナノ粒子を薄膜化した材料の開発が進められた。開発パートにおいて、微小な樹脂構造表面にナノ粒子を薄膜状にコーティングしてナノ粒子薄膜の面内に熱を伝達し、さらにその樹脂構造単位同士を物理的接触によりつなげる方式が考案された。したがって、ナノ粒子薄膜の面内方向における熱伝導性評価は、熱伝導パスの性能を決定する重要な項目である。AIST はスキャニング・レーザー加熱 AC 法を改良した「スポット周期加熱距離変化法」を用いて、開発パートが作成した各種ナノ粒子を出発材料とする薄膜状試料の評価を行った。

スポット周期加熱距離変化法の基本原理を図 3. 4. 1. 3-1 に示す。熱拡散率  $\alpha$  の無限等方物体のある点を  $P_0 \exp(i\omega t)$  により周期加熱したとき、その周りの温度応答  $T_{ac}$  は、

$$T_{ac} = \frac{P_0}{4\pi r \rho c k} \exp[-kr - i(\omega t - kr)] \quad (3. 4. 1. 3-1)$$

ここで、 $P_0$  は加熱量、 $\omega$  は角周波数、 $r$  は点熱源からの距離、 $\rho$  は密度、 $c$  は比熱、 $k$  は温度周期の波数で熱拡散長  $l$  と逆数の関係にあり、

$$k = \frac{1}{l} = \sqrt{\frac{\pi f}{\kappa}} \quad (3. 4. 1. 3-2)$$

で与えられる。ここで  $f$  は加熱源の周波数である。

温度応答  $T_{ac}$  の位相差  $\theta$  は、

$$\theta = -kr = -\sqrt{\frac{\pi f}{\kappa}} r \quad (3.4.1.3-3)$$

で表される。したがって、加熱点からの距離  $r$  あるいは周波数  $f$  を変化させて位相差を測定すれば熱拡散率  $\kappa$  を決定することができる。

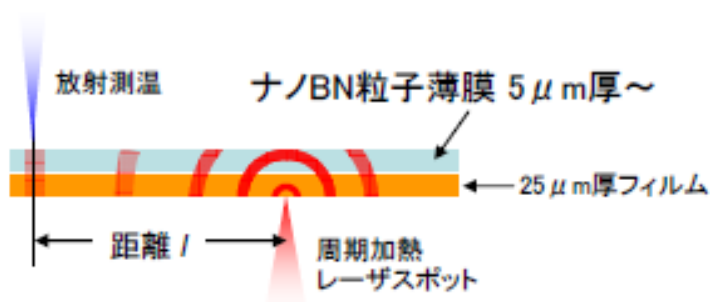


図 3. 4. 1. 3-1 スポット周期加熱距離変化法の概要図

評価サンプルは、成膜条件の比較や検討を容易にするため微小樹脂構造上ではなく厚さ 25  $\mu\text{m}$  のカプトンフィルムまたは PET フィルム上にナノ粒子薄膜を作成した。サンプルの 1 点をレーザースポットにより周期的に加熱を行い、加熱点から離れた位置における温度変動を放射温度計により計測し、式 (3. 4. 1. 3-3) の関係を用いて熱拡散率を算出する。ただし、測定した試料は粒子薄膜の層 (厚さ 5~25  $\mu\text{m}$ ) と基材であるフィルム層 (同 25  $\mu\text{m}$ ) の 2 層構造であることから、上記の結果から得られる熱伝導率 (熱拡散率)

はこの構造による平均であるとした。ここで、平均の熱伝導率  $\bar{\lambda}$  は粒子薄膜の熱伝導率  $\lambda_f$  と基材層の熱伝導率  $\lambda_b$  の体積分率 (=厚さ比率) による合成であると仮定する。

$$\bar{\lambda} = \frac{d_f}{d_f + d_b} \lambda_f + \frac{d_b}{d_f + d_b} \lambda_b = \frac{d_f}{d_f + d_b} \kappa_f C_{p_f} \rho_f + \frac{d_b}{d_f + d_b} \kappa_b C_{p_b} \rho_b \quad (3.4.1.3-4)$$

ここで、 $d$  は厚さ [m]、 $C_p$  は比熱容量 [J/(kg·K)]、 $\rho$  は密度 [kg/m<sup>3</sup>]、 $\kappa$  は熱拡散率 [m<sup>2</sup>/s] であり、添字の  $f$  は粒子薄膜および  $b$  は基材であることを示す。

また、

$$\bar{\lambda} = \kappa \frac{C_{p_f} \rho_f d_f + C_{p_b} \rho_b d_b}{d_f + d_b} \quad (3.4.1.3-5)$$

より

$$\bar{\kappa} = \frac{\kappa_f C_{p_f} \rho_f d_f + \kappa_b C_{p_b} \rho_b d_b}{C_{p_f} \rho_f d_f + C_{p_b} \rho_b d_b} \quad (3.4.1.3-6)$$

式 (3. 4. 1. 3-6) を用いて、スポット周期加熱距離変化法により求めた平均熱拡散率をもとに粒子薄膜の熱拡散率を解析した。なお、解析に使用した基材や粒子バインダーの物性値を表 3. 4. 1. 3-1 に示す。

表 3. 4. 1. 3-1 粒子薄膜の解析に用いた物性値

materials	Cp (Jkg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	$\rho$ (kgm <sup>-3</sup> )	k (m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )	$\lambda$ (Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )
BN	799.8	2280	*2.2 × 10 <sup>-4</sup>	*390
kapton	1100	1420	1.0 × 10 <sup>-7</sup>	0.16
PET	1180	1600	0.9 × 10 <sup>-7</sup>	0.17
ABE-300	**1100	1146	—	—

\*バルクでの参考値 \*\*一般的なアクリル樹脂物性値からの推測

### 3. 4. 1. 4 ハイブリッド樹脂材料のための熱物性分計測装置の開発

ハイブリッド樹脂材料は、樹脂中に無機構造を有する材料であり、成形材料が場所に寄らず均質な物性を持つためには高度な制御技術が必要となる。例えば、放熱性材料において、部分的なハイブリッド構造の乱れは熱伝導性のムラにつながり、放熱性能を落としてしまう。(図 3. 4. 1. 4-1) したがってハイブリッド材料の熱物性分布評価技術は材料開発に必須となる項目である。

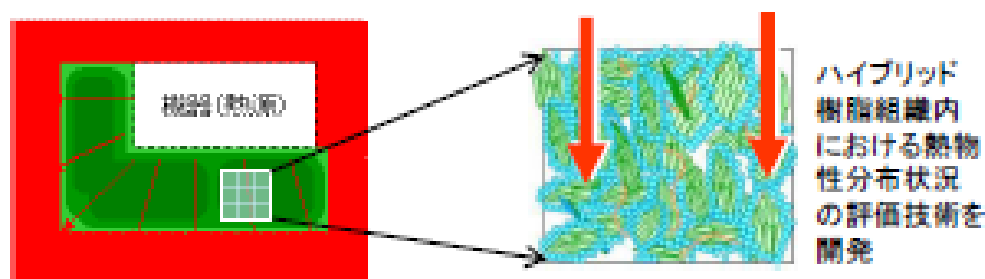


図 3. 4. 1. 4-1 放熱用ハイブリッド材料と熱物性分布計測

AIST では、平成 19 年度に行った計測技術調査に基づき、ハイブリッド材料の熱物性分布評価技術として熱物性顕微鏡が最適であることを明らかにした。現在、本測定技術についてハイブリッド材料評価に対応するための高度化を実施している。熱物性顕微鏡のハイブリッド材料対応のための方針は、おもに下記の 3 点である。

- a. 低熱伝導率側へ測定範囲の拡大
- b. 測定分解能の最適化
- c. S/N 比向上 (有機材料へのダメージ回避)

a. については、従来の熱物性顕微鏡は主にセラミクス材料や金属材料を対象としているため、1 W/(m・K)以下の材料についての測定事例が存在しない。本測定技術では、物性値の導出に基準試料を必要とするため、今回新たに有機材料を用いた基準試料の作製を行った。なお、低熱伝導率側の基準については、ハイブリッド材料の樹脂マトリックス部分の評価に必要となる。b. については、従来の熱物性顕微鏡は 10 $\mu$ m 前後の分解能において 100  $\mu$ m<sup>2</sup>程度の領域を評価とする装置であるが、これよりも広い面積になると測定点が分散した多点測定イメージとなり、実際の熱物性分布状況の把握が困難になる。そこで、高い分解能を必要とする際には従来の性能とし、且つより広い面積において分布状況を評

価できるように分解能を低くすることも可能にする。c. については、有機材料部分は熱伝導率が低く且つ融点が高い材料であるので、レーザー加熱により過昇温してしまい材料の変質が危惧される。そこで、光学系に修正を加え、S/N 比の向上を進めることで低パワーのレーザー光による測定を可能にすることを旨とする。本稿では、優先順位が高い有機材料を用いた基準試料の作成について述べる。

熱物性顕微鏡の詳細な装置原理については、すでに述べているため、ここでは簡単に説明する。図 3. 4. 1. 4-2 に示すように加熱レーザー光によって試料表面に周期加熱を行い、そのときの温度変動周期（位相）を測定レーザーにより検出する。測定サンプルの表面には測定レーザーを反射するための金属膜（Mo 膜）を施す必要があるが、レーザーによる非接触測定であり顕微鏡光学系を用いることで高い分解能を達成できる。また、本測定方法によって得られる値は熱浸透率  $b[\text{J}/(\text{m}^2 \cdot \text{s}^{0.5} \cdot \text{K})]$  であり、熱伝導率  $\lambda[\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})]$  とは以下の関係にある。

$$b = \sqrt{C\lambda} \quad (3. 4. 1. 4-1)$$

ここで、 $C[\text{J}/(\text{m}^3 \cdot \text{K})]$  は単位体積あたりの比熱容量である。

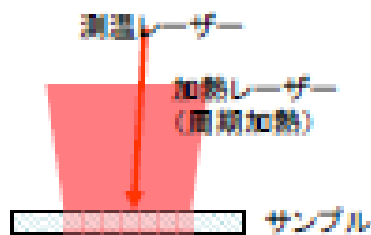


図 3. 4. 1. 4-2 熱物性顕微鏡の原理概要

装置構成を図 3. 4. 1. 4-3 に示す。従来装置では、加熱レーザーと测温レーザーを同軸にして試料へと照射するが、本装置では测温レーザーと加熱レーザーのスポット径を独立に調整できるようにするため、光路を分離している。また、装置外観写真を図 3. 4. 1. 4-4 に示す。

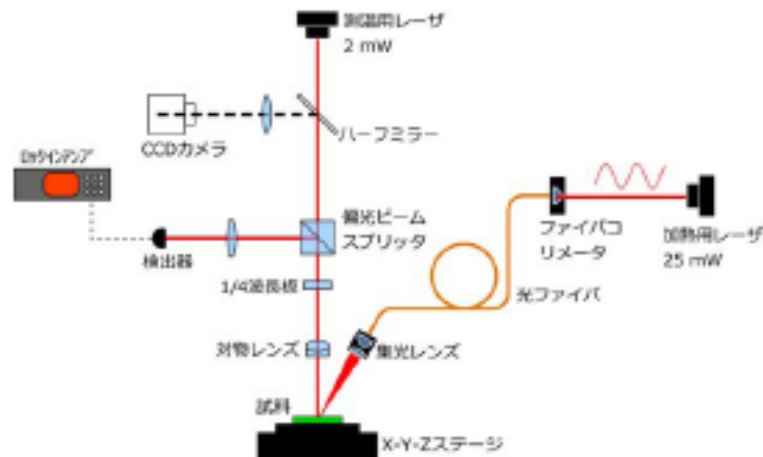


図 3. 4. 1. 4-3 熱物性顕微鏡の装置構成図

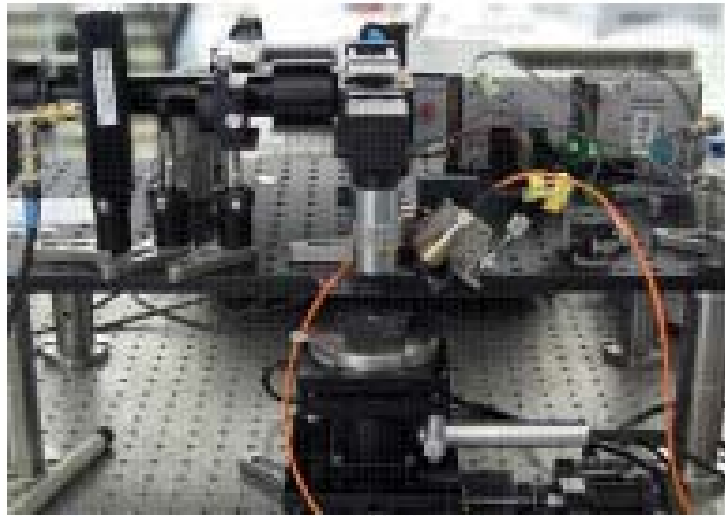


図 3. 4. 1. 4-4 熱物性顕微鏡の装置外観

本装置の基準試料として、熱物性顕微鏡でよく用いられる Pyrex、酸化ジルコニウム ( $ZrO_2$ )、チタン酸ストロンチウム ( $SrTiO_3$ )、酸化アルミニウム ( $Al_2O_3$ ) に加え、ポリメチルメタクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネートの 3 種類を作成した。試料は 1 cm×1 cm 角の大きさとし、表面は光沢のある鏡面とした。これらの試料に dc スパッタリング法を用いて、厚さ 100 nm のモリブデン (Mo) 薄膜を反射膜として施した (図 3. 4. 1. 4-5)。

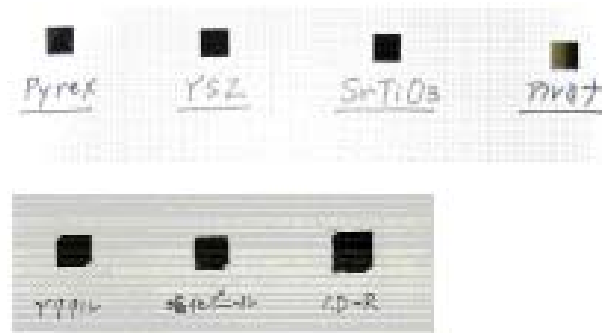


図 3. 4. 1. 4-5 評価用の基準試料

また、これらの試料の熱伝導率および熱浸透率を表 3. 4. 1. 4-1 に、熱物性顕微鏡による測定結果を図 3. 4. 1. 4-6 に示す。なお測定に使用した装置は現在改修作業を進めている段階にあることから、ここでは Pyrex を基準とした位相値について比較を行った。用意した基準試料の全てで位相信号の測定が可能であった。位相値は熱浸透率に対して一義的に変化をし、位相値により熱物性評価が可能であることを示している。今後は、これらの基準試料を利用し装置の高度化を進めていく予定である。

表 3. 4. 1. 4 - 1 各基準試料の熱新棟率測定結果

	アクリル	塩化ビニル	単結晶シリコン	パイレックスガラス	ZrO <sub>2</sub> (YSZ)	SrTiO <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
熱伝導率, Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	0.21	0.15	0.19	1.1	3.1	11.2	21
熱膨張率, Jm <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>	510	550	520	1350	2800	5800	7900

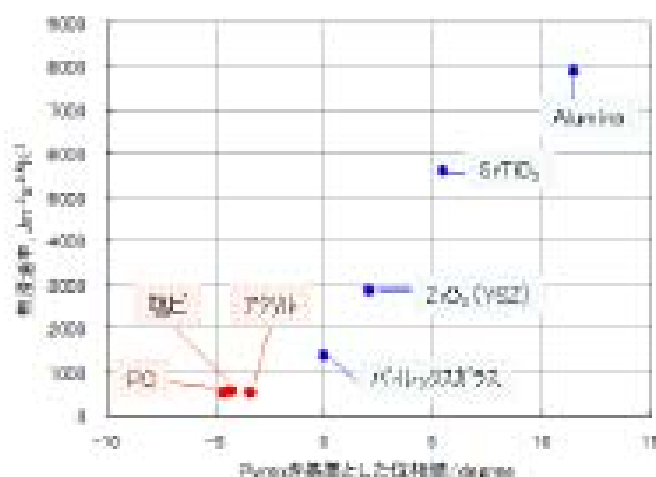


図 3. 4. 1. 4 - 6 基準用試料の熱物性顕微鏡による位相測定結果

### 3. 4. 1. 5 これまでの成果まとめ

薄膜および微小領域の熱物性計測手法に関する調査を行った。ナノ粒子から成る薄膜には、膜厚方向の評価には、パルス加熱サーモリフレクタンス法が最適である。一方、面内方向にはスキャンニング・レーザー加熱 AC 法が適用できる。前者については産総研保有の装置であり、後者はアルバック理工社に試験を依頼できるため、必要に応じて使い分けながら評価することが可能である。

ハイブリッド材料の分布評価手法については、現時点では熱物性顕微鏡が唯一の手段である。本測定法では試料表面をあらかじめ平滑にしたうえで金属膜の被覆が必要であるが、ハイブリッド材料を加工することに問題はないと思われる。

次年度からの評価の進展については、まずナノ粒子を薄膜状としたものに対して、高熱伝導性が確保されているかを薄膜計測技術により検証し、次のハイブリッド化した段階では微小領域の熱物性計測技術により最適な分布構造を有することを評価し、バルク材料としての熱物性値と相互比較しながら開発を進める方向と考えられる。

本サブテーマでは、開発パートによるハイブリッド材料の熱物性評価を担当した。開発ステージに対応した評価手法の調査を行い、その情報をもとに評価体制を整備し材料評価データの生産と開発パートへのフィードバックを行った。具体的には、開発の進展に合わせて薄膜状サンプルや繊維複合サンプル評価を実施し、またハイブリッド樹脂サンプルのための評価技術の開発を進めた。

中間評価までの期間において、多数のナノ粒子薄膜サンプルの熱物性評価を実施した結果、評価データとしては高熱伝導性が得られなかったが、正しい評価結果を開発パートへ

と直ちに提供することで開発方針の転換と評価結果が役立てられた。

### 3. 4. 1. 6 研究発表・講演、論文、特許等の状況

#### 研究発表・講演

なし

#### 論文

なし

#### 特許等

なし

#### その他の公表（プレス発表等）

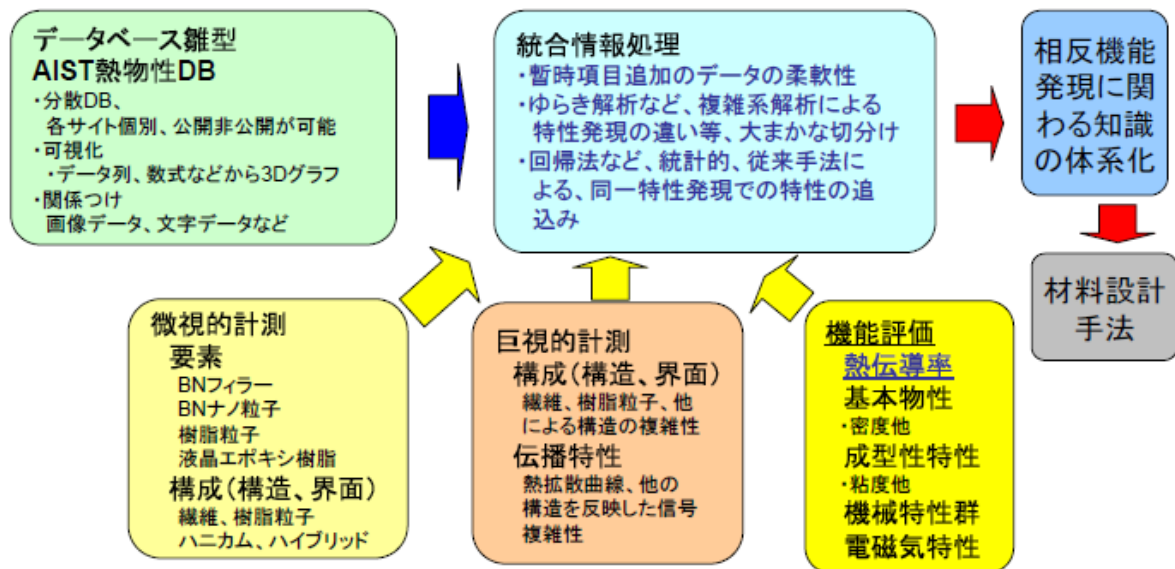
なし

### 3. 4. 2 材料設計に資する統合評価・支援技術開発（三菱化学担当）

#### 3. 4. 2. 1 中間評価までの達成状況

AISTのDBの中に構成する形で不足するデータを補い、統合処理、体系化の中核となるDBは構築できた（図3. 4. 2. 1-1）。DBの入力項目には、熱物性機械特性、成型性などの相反する機能を発現させるための解析に必要な項目以外に、後々熱設計等の部材設計に活かせるような種々の項目も組み込んだ。しかし、物性測定が熱伝導率中心であり、相反する機械特性、成型性の測定には至っていない。

一方、実際に窒化ホウ素（BN）を塗布した膜の熱物性顕微鏡データへのゆらぎ（複雑系）解析適用可否について、AISTより提供をうけたデータを用いて解析を実施した。その結果、ゆらぎ解析の有用性、解析による高熱伝導材料開発の可能性を試行の範囲であるが見出せた（図3. 4. 2. 1-2）。現時点では、開発中の材料データを用いているため、解析が行えても、その性状が不明確で比較検討ができない場合があった。



各種計測、評価結果等の情報を収集、解析、統合処理、材料開発各パートへフィードバック

図3. 4. 2. 1-1 熱物性 DB 統合処理体系化の全体像



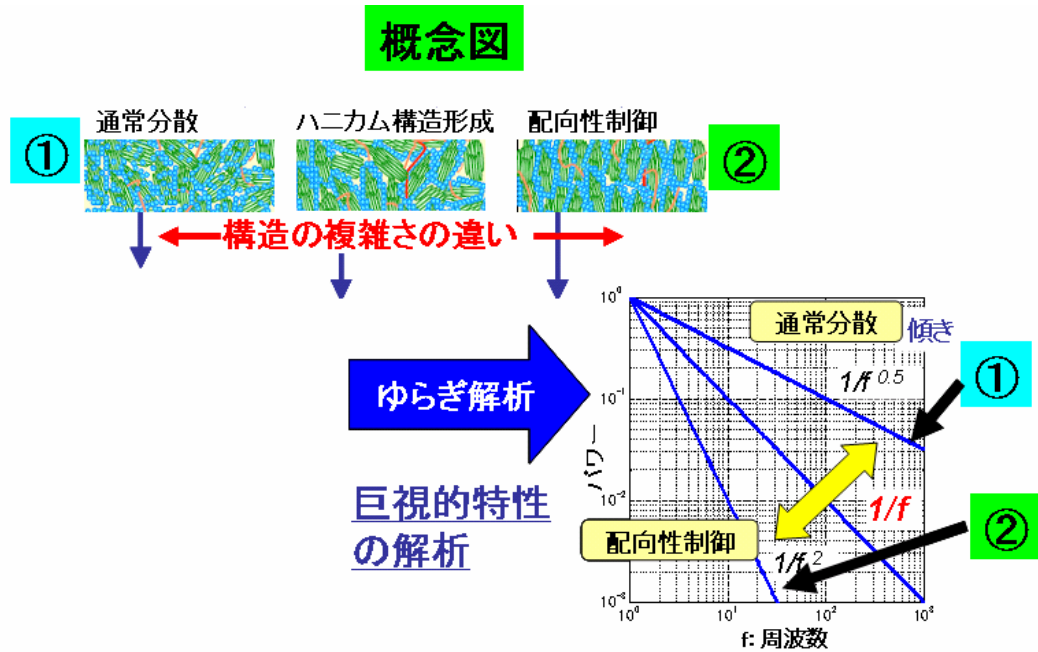


図 3. 4. 2. 1 - 2 巨視的解析の概念 (ゆらぎ解析)

### 3. 4. 2. 2 これまでの成果まとめ

産総研の熱物性 DB を統合処理、体系化のフレームワークの中心として試行導入した。AIST の DB の中に構成する形で不足するデータを補い、統合処理、体系化の中核となる DB は構成できたが、得られたサンプルの測定が熱伝導率中心であるため、相反する機械特性、成形性の測定には至っていない。

一方、BN 塗布膜を熱物性顕微鏡により測定し、データをゆらぎ (複雑系) 解析へ適用した結果、試行の範囲ではあるが、ゆらぎ解析の有用性を見出すことが出来た。

### 3. 4. 2. 3 研究発表・講演、論文、特許等の状況

#### 研究発表・講演

なし

#### 論文

なし

#### 特許等

なし

#### その他の公表 (プレス発表等)

なし

### 3. 5 ①超ハイブリッド材料創製技術開発

#### 3. 5. 1 中間評価までの達成状況

中間目標レベルの相反機能を達成するためには、構成成分である高熱伝導フィラー自身や樹脂マトリックスを高熱伝導化することのみによっては困難であり、目標の高熱伝導率を達成するには成形性を確保しつつ高充填化しやすいという特性を有する粒子を用いることが最重要であると判断した。すなわち、新しいコンセプト（コンセプト2）では、粒子を設計することで最密（最適）充填配置を可能とし、かつ成形加工性も保持することを特徴としている。この高充填－高熱伝導コンセプト（図3. 5. 1－1）に基づき、中間目標を満足する複合材料を得た。

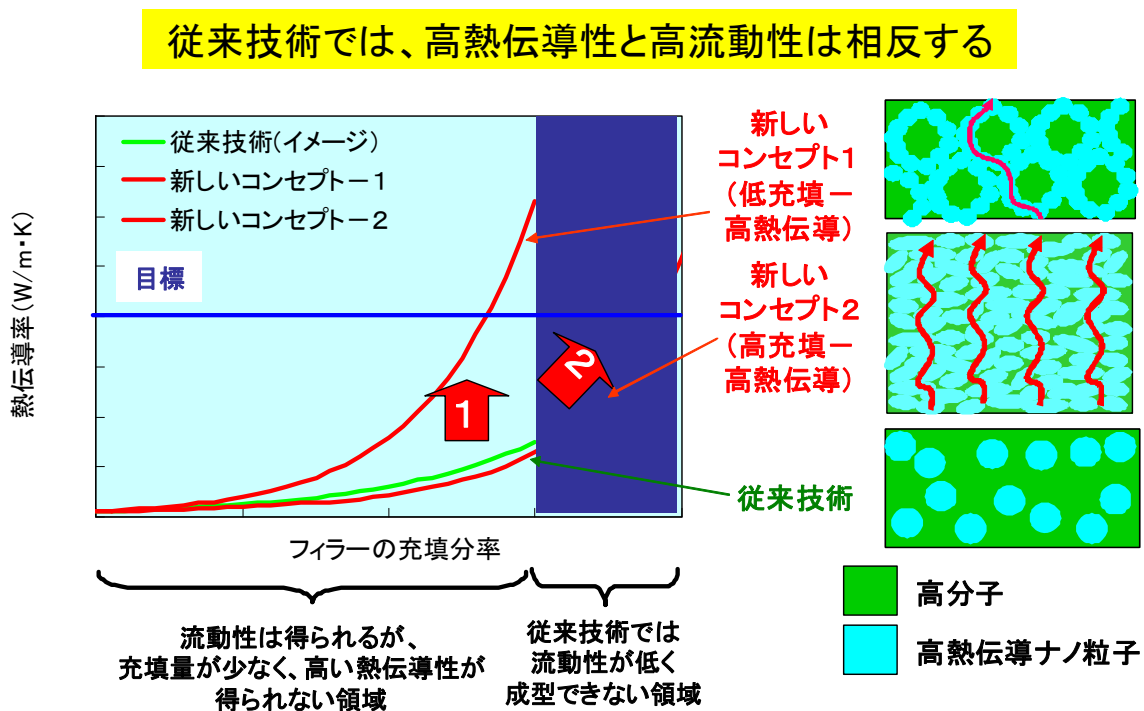
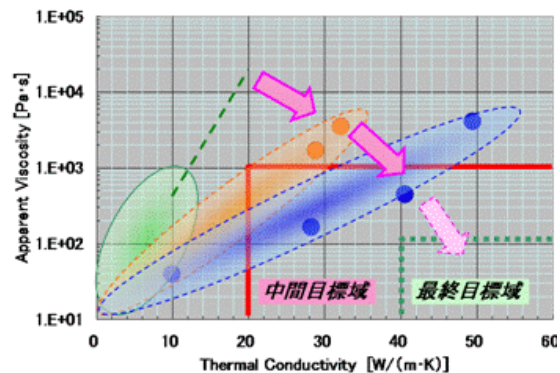
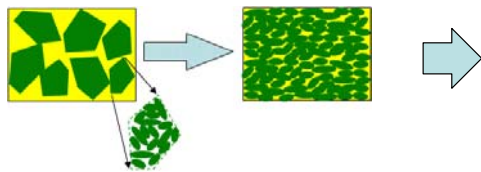


図3. 5. 1－1 超ハイブリッド高熱伝導材料開発戦略

中間目標達成の推定原理としては、自明のものも含めて、次のようなことを考えている。すなわち、フィラー自体が高熱伝導率であること、また複合材としてそれを達成できるだけの高充填率であること、次にフィラー凝集体が適した設計であること、自己潤滑性を有していること、さらにそれらが加工性においても有効であること、さらに樹脂マトリックスの粘度を低下させて、加工性を改善したこと、があげられる。加えて、加工時に壁面との間に低粘度相を排出してすべりを起こす可能性や成形時にフィラーが配向し、有効に接触したりすることで高熱伝導化することも考えられる（図3. 5. 1－2）。

また、ユーザーニーズを把握することを目的として、各家電メーカーに高熱伝導サンプルをを持ち込んだところ、熱伝導の方向やその他の機械物性など用途に応じてさまざまであることも分かった。

凝集体の最適粒子径分布化



	中間目標	最終目標	現状-1	現状-2	中間目標達成度
熱伝導率 W/m·K	$\geq 20$	$\geq 40$	24	41	◎
粘度 Pa·s	$\leq 1,000$	$\leq 100$	170	450	◎
比重	$\leq 3.5$	$\leq 2.5$	1.8	1.9	◎
耐衝撃強度 J/m	$\geq 15$	$\geq 24$	22	33	◎
電気抵抗値 $\Omega \cdot \text{cm}$	$\geq 10^{12}$	$\geq 10^{12}$	$\geq 10^{14}$	$\geq 10^{14}$	◎

図3. 5. 1-2 中間目標の達成度とその位置づけ

### 3. 5. 2 これまでの成果のまとめ、今後の予定

高熱伝導性フィラーを設計することにより、高充填かつ易加工性を両立させるというコンセプトを検討した結果、中間目標を満足する複合材料を得た。

また、ユーザー候補企業のニーズ調査から、熱伝導材料は、熱伝導の方向や機械的強度など用途に応じてさまざまな要求特性があることがわかった。

新しいコンセプトに基づき、中間目標値を達成することができたが、その原理については必ずしも解明されておらず、今後はその機構を解析して、最終目標値の達成に結び付けるとともに、この新しいコンセプトの他の系への展開等を通じて、事業化に結び付けていきたい。

### 3. 5. 3 研究発表・講演、論文、特許等の状況

#### 研究発表・講演

なし

#### 論文

なし

#### 特許等

なし

#### その他公表（プレス発表等）

なし

#### 4. 研究開発項目毎の成果

(東レ・ダウコーニング株)

##### 4. 1 概要

超臨界流体技術を利用し、機能性ナノ粒子とポリシロキサンからなるハイブリッド材料を合成する技術開発を行った。ポリシロキサン前駆体の構造および反応条件を制御することにより、表面に含ケイ素有機層を有し、粒子径が100nm以下の微粒子を含む、多方面に応用可能なハイブリッド微粒子を合成する技術を開発した。

本技術を応用し、微粒子の酸化状態を制御することにより、安価な原料を出発物質とし、次世代電子デバイス用放熱性ポリシロキサンに適用可能なハイブリッド微粒子の高効率合成手法を開発した。一方、耐熱性微粒子を使用し、表面含ケイ素有機基の構造を制御することにより、耐熱性と加工性に優れた次世代耐熱性ポリシロキサン封止材料を開発することに成功した。

##### 4. 2 ③相反機能材料創製プロセス基盤技術開発 (国立大学法人 東京大学)

###### 4. 2. 1 研究開発の背景

本研究開発では、環境負荷低減化技術として注目され、近年材料製造への応用も盛んに検討されている高温高压水(超臨界水)の技術を応用し、プロセス基盤技術開発を行うことにした。高温高压水の特徴および応用例を図4. 2. 1-1に示す。

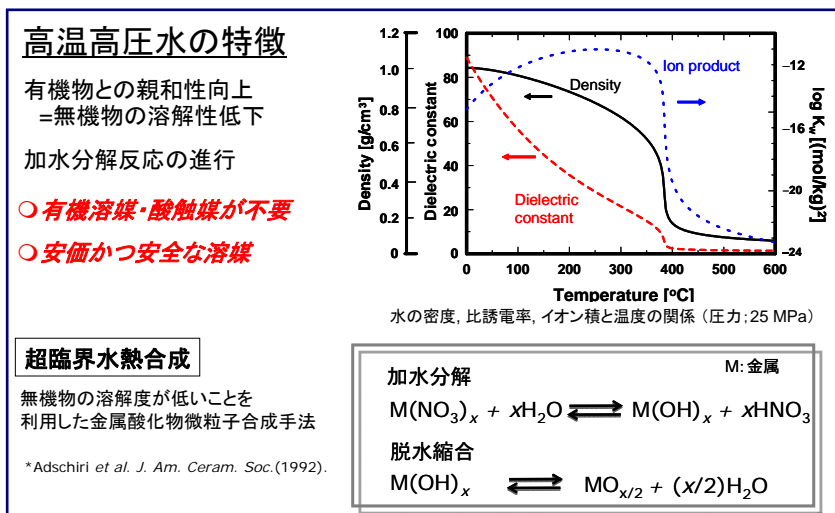


図4. 2. 1-1 高温高压水の特徴および応用例

具体的には、結晶性の高いナノ粒子が短時間で生成し、かつその表面修飾も同時に達成可能と報告されている水熱合成in-situ表面修飾による有機-無機ハイブリッドナノ粒子合成法を検討した。その概念図、および高温高压水によるポリシロキサン合成の特徴を図4. 2. 1-2に示す。これら高温高压水を利用した2つの類似技術を組み合わせることは、ポリシロキサンとナノ粒子から成るポリシロキサン系超ハイブリッド材料創製に有用であると考えられる。

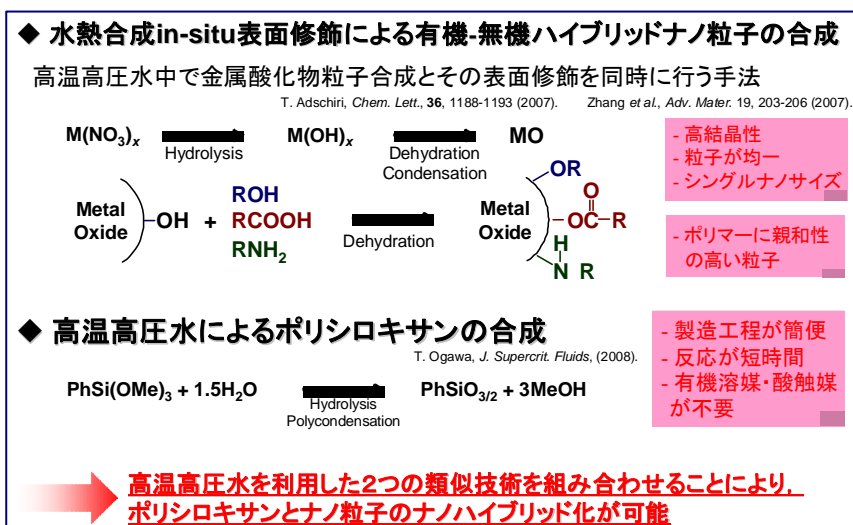


図4.2.1-2 超ハイブリッド材料創製のための高温高压水を利用する要素技術

#### 4. 2. 2 基盤技術開発の目標と達成状況

本基盤技術開発の目標と達成状況を図4.2.2-1にまとめた。いずれも後述する①「ポリシロキサン系超ハイブリッド材料創製技術開発」に有効な基盤技術に関する。流通系装置開発において、検討スケジュールから若干遅れがあるものの、二種の材料に対する基盤技術開発は、ほぼ予定通り進捗している。

検討項目	検討結果	達成状況
<b>耐熱性材料(シリカ系ハイブリッド)</b> ❖ ハイブリッド微粒子構造に対する合成条件依存性 ❖ 粒子構造が材料物性に与える影響	❖ 表面修飾率が制御されたポリシロキサン修飾ナノ粒子の合成に成功 ❖ シリカナノ粒子を硬質ポリシロキサンに良分散させる技術提案	◎ ◎
<b>放熱性材料(金属系ハイブリッド)</b> ❖ 表面修飾剤、金属種の影響 ❖ 合成手法が表面修飾、粒子径、金属酸化状態に及ぼす影響 ❖ 流通式装置によるプロセス提案	❖ エポキシシロキサンの高い表面修飾効果を確認 ❖ 二段階加熱反応による表面修飾、酸化状態の制御を確認 ❖ 流通式装置による製造のための要素技術を確立	◎ ◎ ○

図4.2.2-1 本基盤技術開発の目標

#### 4. 2. 3 検討内容

##### 4. 2. 3. 1 耐熱性材料基盤技術開発

###### (1) ハイブリッド微粒子の合成とキャラクタリゼーション

シリカ粒子表面に有機官能基としてポリシロキサンを導入する技術として、高温高压水を用いた表面修飾反応を検討した。実験は回分式反応器を用い、ポリシロキサン前駆体とコロイダルシリカを原料とし、高温高压水中で所定時間反応を行った。300℃、シリカ/ポ

リシロキサン重量比率1、反応時間10分の実験で得られたハイブリッド微粒子(#1)のTEM像を図4.2.3.1-1に示す。ポリマー中に10-20nmのシリカ粒子が粗大凝集することなく均一に分散していることが分かる。IRスペクトルより、得られた粒子にはフェニル基、メチル基に由来するピークが見られたことから、表面上にポリシロキサンが結合していることが分かった。以上により、シリカ粒子の表面修飾が短時間で十分進行したことが確認できた。また、TG測定により、表面修飾量（ハイブリッド微粒子に対する重量比）は18wt%であることが示された（図4.2.3.1-2）。ほぼ均一に表面修飾反応が起こったと仮定すると、表面1nm<sup>2</sup>当たり5個のモノマーユニットが存在することが示唆された。

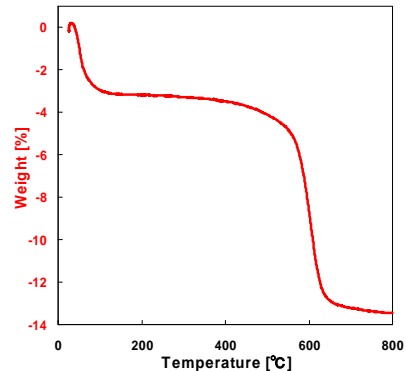
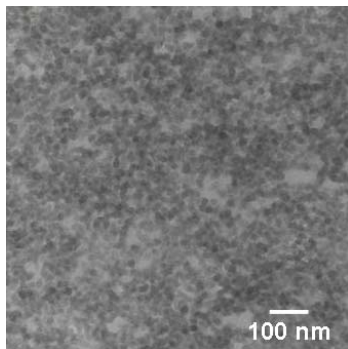


図4.2.3.1-1 TEM写真（ハイブリッド微粒子） 図4.2.3.1-2 TGプロファイル（同粒子）

## （2）微粒子合成条件依存性及び表面修飾メカニズムの検討

表面修飾のメカニズムを検討するため、表面修飾率（グラフト率）の反応時間依存性を調べた。結果を図4.2.3.1-3に示す。反応初期ではグラフト化ポリマー量はほとんど増加せず、一方反応後半では、グラフト率は大きく増加した。このことから、ポリシロキサンによるシリカ微粒子のグラフト化反応は2段階で進行していることが示唆された。

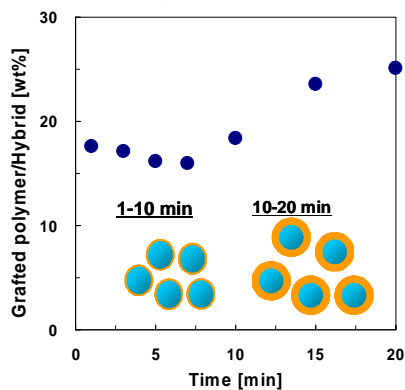


図4.2.3.1-3 グラフト率の時間依存性

続いて、コロイダルシリカの代わりにシリカナノ粒子と水を原料として実験を行った。300°C、シリカ/ポリシロキサン重量比率1における、表面修飾量に対する時間依存性をコロイダルシリカを原料とした実験と比較して図4.2.3.1-4に示す。シリカナノ粒子を原料とした場合、表面修飾量はコロイダルシリカ原料の場合と比べて大幅に少ないことが明らかになった。原料シリカナノ粒子はある程度凝集していることから、コロイダルシリカが反応開始時に液相中で均一に分散していることが表面修飾量に影響していると考えられる。

さらに、粒子の表面状態が表面修飾量に与える影響を調べるため、粒子の表面状態と粒径の異なる3種類のシリカナノ粒子を用いて同様の検討を行った。それぞれ得られた微粒子の表面修飾量を図4.2.3.1-5に示す。平均粒子径が10 nmのシリカナノ粒子に関して、粒子表面親水性のものと疎水性のもの比較したところ、同条件において疎水性のものの方が表面修飾量は少なくなることが明らかになった。また、表面が親水性であっても、粒径が10 $\mu\text{m}$ のものでは表面修飾量は非常に小さかった。これらの結果から、粒子の表面積や表面水酸基量が表面修飾量に大きく影響するといえる。

その他、温度・反応時間・修飾剤添加量などの条件が表面修飾量に与える影響を検討し、条件により表面修飾量及びその構造を制御することが可能となった。

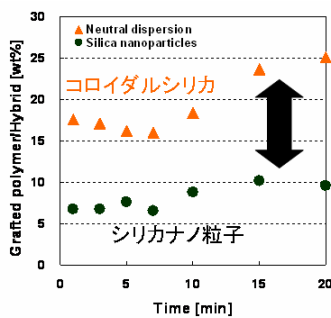


図4.2.3.1-4 表面修飾量の反応時間依存性

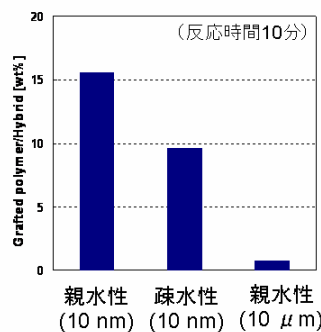


図4.2.3.1-5 シリカ微粒子の表面特性と表面修飾量の関係

### (3) 合成したハイブリッド微粒子を含むハイブリッド材料特性の初期評価

これらの結果を踏まえ、表面修飾量の異なるハイブリッド微粒子を合成し、ポリマー中に分散させることでハイブリッド材料としての初期評価を行った。合成したハイブリッド微粒子（表面修飾量6wt%、18wt%）に加え、比較のために表面処理をしていない10nmシリカ粒子を充填材として用い、シリカ微粒子分散ポリシロキサンを150 $^{\circ}\text{C}$ で加熱硬化した。得られた硬化物の写真を、充填材なしで同条件において硬化させたポリマーの写真とともに図4.2.3.1-6に示す。未処理のシリカ粒子を用いた(b)は非常にもろくひび割れを起こしたが、ハイブリッド微粒子を用いた場合((c)、(d))は粒子がほぼ均一に分散し、ひび割れを起こすことはなかった。また、表面修飾量の違う(c)と(d)を比較すると、修飾量が多い(d)のほうが粒子の均一性が高く、外観に優れていた。硬化前の微粒子分散ポリシロキサンに関して粘度測定を行ったところ、表面修飾量が多いほど粘度が低くなることが分かっており、これらの結果から、表面修飾量が少ない場合はシリカ粒子表面が完全に修飾剤で覆われておらず、部分的に微粒子の凝集を起こしてしまうと考えられる。

以上の検討により、合成条件がハイブリッド微粒子の表面構造や修飾量に与える影響、さらには修飾量が材料物性に与える影響を明らかにすることができた。



図4.2.3.1-6 合成したハイブリッド微粒子により作成した硬化物の外観（充填物なしの場合、10nmシリカ粒子を用いた場合との比較）

#### 4. 2. 3. 2 放熱性材料基盤技術開発

##### （1）in-situ金属微粒子表面修飾に関する基礎的な検討

金属微粒子合成と同時に目的の有機官能基を粒子表面に導入する技術として、高温高压水を用いたin-situ金属微粒子表面修飾技術の検討を行った。その概要を図4.2.3.2-1に示す。硝酸銅水溶液と様々な表面修飾剤を用いた検討により、エポキシシロキサンを用いたときに表面修飾と同時に粒子を金属まで還元できることが明らかになった。

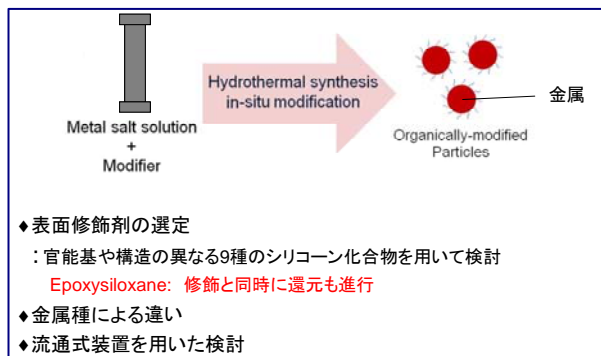


図4.2.3.2-1 高温高压水を用いたin-situ金属微粒子表面修飾技術

次に、金属種の違いが表面修飾や生成物に与える影響を検討した。鉄、亜鉛、ニッケル、銀の硝酸塩水溶液を原料とし、エポキシシロキサンを表面修飾剤として用いて合成した微粒子の特徴を表4.2.3.2-1にまとめて示す。金属種により、微粒子のサイズやモルフォロジーが大きく異なることが明らかになった。また、鉄、亜鉛、ニッケルでは得られた粒子は金属酸化物であり、EDSスペクトルでSiが観測されたことから得られた微粒子はハイブリッド化されたと判断できる。一方、銀の場合は得られた微粒子は金属銀であり、Siが観測されなかった。以上の検討で得られた鉄、亜鉛、ニッケルは銅や銀に比べて高温高压水への溶解度が低い<sup>1)</sup>ことが知られており、溶解度が低いほど過飽和度が高いために小さく均一な微粒子が生成すると考えられる。また、鉄、亜鉛、ニッケルのように金属酸化物が生成する金属種では表面修飾が良好に進行するが、銅や銀のように金属まで還元される金属種の場合は、金属粒子表面上に修飾サイトである水酸基が少ないため表面修飾の効率が低いと考えられる。以上により、表面修飾と還元を切り分けて考えることが重要であることが示された。

表4.2.3.2-1 種々の金属塩からのハイブリッド微粒子合成結果

金属塩種	生成粒子	粒子形状, サイズ	表面修飾
硝酸銅	Cu	形状, サイズ共に不均一	△(アモルファス部分)
硝酸鉄	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	球形, サイズ均一 (約30 nm)	○
硝酸亜鉛	ZnO	棒状, サイズ不均一	○
硝酸ニッケル	NiO	形状, サイズ共に不均一	○
硝酸銀	Ag	形状, サイズ共に不均一	×



## (2) 表面修飾メカニズムの検討

上記の結果を踏まえ、より詳細な表面修飾のメカニズムを検討するため、酸化銅ナノ粒子を出発物質とした表面修飾実験を行った。エポキシシロキサンによる酸化銅の表面修飾及び還元を種々の反応条件で検討したところ、条件を制御することにより、表面修飾と還元を二段階に分けることが可能となった。この結果、有機ケイ素を表面に有する銅のハイブリッド微粒子が合成できることが分かった。

## (3) 流通式装置開発

有機ケイ素修飾ハイブリッド微粒子を合成する流通系装置設計を行った。流通式装置により、装置の巨大化を伴わず合成のスケールアップが可能であり、また、還元剤や修飾剤の混合タイミングを容易に変えることができるため、前項で述べたような表面修飾と還元を切り分けた合成プロセスを構築することが可能である。設計装置を用い、350℃においてエポキシシロキサンを用いたin-situ表面修飾を試みたところ、反応時間二秒程度の非常に短い反応で粒径が概ね100nm以下の有機ケイ素修飾酸化銅微粒子が合成できた。しかしながら、一部は金属銅に還元されて反応器内に蓄積する問題が明らかになった。従って、還元の起こらない表面修飾剤を用い、修飾後に還元剤を別途添加するプロセスが有効であると考えられる。

また、本装置では原料塩の加熱方法として、常温の原料塩水溶液に大量の予熱水を混合する、急速昇温法と呼ばれる方法を採用している。この急速昇温を行う混合部の設計が、生成する粒子形状や粒径、反応器の閉塞等に大きく影響することがわかっており、流通式装置でハイブリッド微粒子合成を行う際の重要なファクターになる。このような混合方法の最適化の知見は、本系のみならず高温高圧水を用いた微粒子合成に広く重要であり、流体シミュレーションと組み合わせることにより、混合状態と粒子生成反応の関係性を明らかにし、一般的な設計指針を得ることができると考えており、現在検討中である。

### 4. 2. 4 参考文献

1) 陶究、化学工学、**71**、492-495、(2007)

### 4. 3 ①ポリシロキサン系超ハイブリッド材料創製技術開発 (東レ・ダウコーニング株)

#### 4. 3. 1 研究開発の背景

自動車、コンピューター、ディスプレイ等のエレクトロニクス関連商品の軽薄短小化はとどまるところを知らず、これに伴って各部品が発する熱的ストレスは高集積化によって高まる一方である。この熱的条件から部品を保護し、熱を積極的に逃がす放熱材料が求められている。デバイス隙間充填材等の典型的な用途を図4.3.1-1に示す。流動性に優れ、耐熱性、電気特性も良好であるポリシロキサン(シリコーン)もその候補材料の一つであり、熱伝導性の良好な無機粒子を高度に充填した放熱性ポリシロキサン材料が開発されてきた。次世代エレクトロニクス部材用の放熱性高分子材料としては、放熱性および基材への接着性に優れ、微細かつ正確な塗布による加工性が優れているといった相反機能(いわ

ゆるトレードオフ)を有する材料が要望される。しかしながら、ポリシロキサンを含む現行の放熱性高分子材料では、上記の要望を満足できない可能性が高い。

一方、省エネルギーの観点から、SiCに代表される次世代半導体の実用化がここ数年で視野に入ってきた。一例を図4.3.1-2に示す。これら次世代半導体の能力を有効に活かすためには、その封止技術、材料も非常に重要であり、具体的には高耐熱性、低熱膨張性、良成形加工性を満足する相反機能を有する材料が要望されている。ポリシロキサンもこれら用途の候補材料として活発に検討されているが、通常の技術で製造した耐熱性無機粒子充填材含有ポリシロキサンでは加工性に劣るため、耐熱性無機粒子の表面修飾技術を含めた技術的ブレークスルーが必要である。

本研究開発では、微粒子を適宜選択することにより、上述した相反機能を満足させるような二種の機能性微粒子含有ポリシロキサン系超ハイブリッド材料の開発を行った。

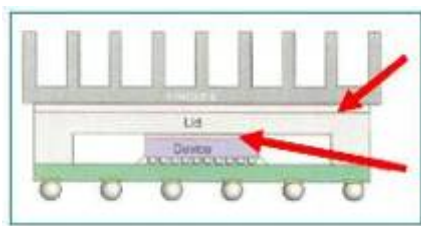


図4.3.1-1 放熱性材料の応用例



図4.3.1-2 次世代半導体SiCの応用例

#### 4. 3. 2 技術的課題および目標設定

次世代の半導体周辺材料の開発には、上述したようなトレードオフを満足させる技術開発が必要である。開発対象を次世代半導体封止材料とした場合、耐熱性に優れ、加工性(流動性)の良好な材料が求められている。耐熱性の尺度を熱膨張係数(CTEと略)とし、加工性の尺度を粘度とすると、図4.3.2-1に示した相関が得られる。ポリイミドのように耐熱性に優れた材料は、加工性に劣るというトレードオフが存在する。実際シリコンに耐熱性微粒子を高度に充填した耐熱性シリコンでは、その耐熱性は満足できる領域にあるものの、加工性が非常に悪く、使い勝手の悪い材料となっている。

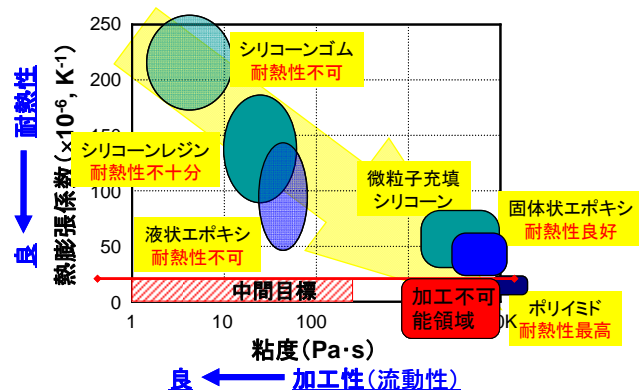


図4.3.2-1 耐熱性高分子材料の耐熱性と加工性の相関図

本研究開発においては、超ハイブリッド中に導入する微粒子を表面エネルギーの小さいポリシロキサンで表面修飾することにより、微粒子の高度な分散を達成することによりこ

のトレードオフを解消するという技術手法を採用した。このような有効な表面修飾のためには、その反応条件以外にポリシロキサンサイズ、付与した官能基が重要と考えられる。一方、弊社研究グループでは、環境負荷低減技術として有望な高温高压水を使用したシロキサン前駆体の加水分解・縮合反応を検討し、触媒を使用することなくポリシロキサンが生成することを見出している。<sup>1)</sup> その反応をハイブリッド製造技術に応用する基盤技術開発を行うと同時に、上述のポイントに注力しながら材料開発も行った。

#### 4. 3. 3 材料系の選定

上述したように、本研究開発では導入する微粒子を適宜選択することにより、相反機能を満足させるような二種のポリシロキサン系超ハイブリッド材料、すなわち放熱性超ハイブリッド材料および耐熱性超ハイブリッド材料の開発が可能と考えられる。以下にそれぞれの初期技術開発の概要を記す。

##### 4. 3. 3. 1 ポリシロキサン系放熱性超ハイブリッド材料の初期技術開発概要

熱伝導性微粒子とポリシロキサンからなるポリシロキサン系放熱性ハイブリッド材料創製に適用する技術開発を行った。概要を図4.3.3.1-1に示す。

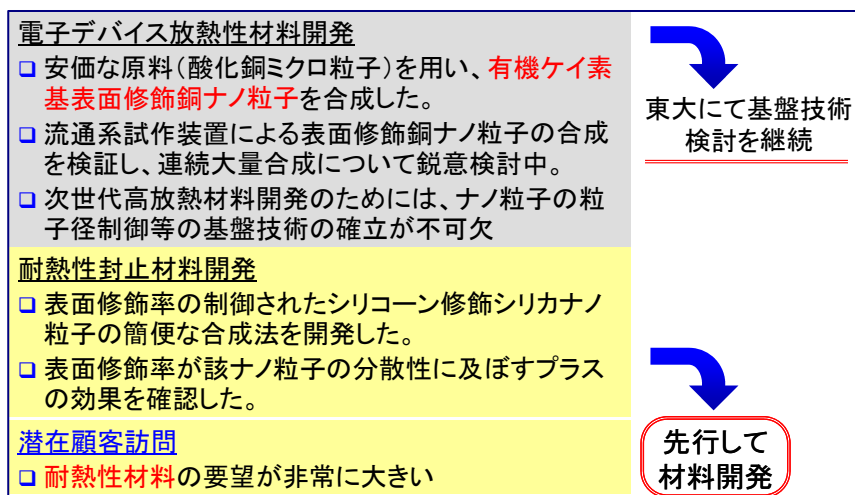


図4.3.3.1-1 初期技術開発概要

本技術開発では、入手可能な微粒子を使用するハイブリッド微粒子の合成手法について詳細に検討した。反応条件により微粒子の酸化状態を制御することにより、表面に均一な含ケイ素有機層を有するハイブリッド微粒子が生成することを見出した。合成した微粒子は保存安定性も良好であることが分かった。

また、合成時の条件制御が容易で、生成物の特性管理がしやすい流通系での合成技術についても検討した。金属酸化物ナノ粒子の流通系による合成技術については、阿尻らが詳細に検討しているため、<sup>2)</sup> その技術を参考に検討を進めた。各原料の混合様式、反応温度、反応時間等の制御により、表面に含ケイ素有機層を有するために疎水性を示すハイブリッド微粒子の連続大量合成の可能性が示された。ただし、この技術はまだまだ確立しているとは言えず、東京大学で基盤技術検討を継続することになっている。

#### 4. 3. 3. 2 ポリシロキサン系耐熱性超ハイブリッド材料の初期技術開発概要

高温高压水技術による、シリカ等の耐熱性ナノ粒子をポリシロキサンで表面修飾する技術開発を行った。概要を図4.3.3.1-1に併せて示す。ポリシロキサン前駆体の構造、合成時の条件（温度、時間、酸性度等）を適正化することにより、表面修飾率の制御されたハイブリッドナノ粒子を簡便な方法で合成する手法を開発した。続いて、合成したハイブリッドナノ粒子をポリシロキサン組成物中に組み込み、耐熱性ハイブリッド材料を合成する検討を行った。表面修飾率の異なるハイブリッドナノ粒子をポリシロキサン中に混合したところ、その表面修飾率が高いほど組成物の粘度は低下した。これは、該ナノ粒子のポリシロキサンに対する親和性が、表面修飾率が高いほど向上することを示唆している。また、これら組成物を硬化したところ、表面修飾率の高いナノ粒子ほどポリシロキサン中での分散性に優れていた。このことから、当初予想されたとおりに、ポリシロキサン中にナノ粒子を良好に分散させるためには、その表面修飾が非常に重要であることが確認された。

#### 4. 3. 3. 3 材料開発の優先度

上記に初期検討の結果をまとめたように、使用する微粒子の種類を変更することにより、放熱性および放熱性の二種類の超ハイブリッド材料の開発可能性が示された。一方、効率的に開発を行うため、どちらか一方の材料系において材料開発を先行させることにした。その選定基準としては、技術以外に市場からの要望の大きさも重要である。このたび潜在的な顧客4社を訪問し、現在検討中のハイブリッド材料の概要について説明したところ、電子デバイス放熱性材料よりも、耐熱性パッケージ材料の開発要望が高いことが判明した。この結果を受け、今後の材料開発は、耐熱性超ハイブリッド材料に注力することにした。

#### 4. 3. 4 開発目標と達成状況

前項に記したように、現在は耐熱性超ハイブリッドの材料開発に注力している。この材料に対する開発目標と達成状況を表4.3.4-1にまとめた。

表4.3.4-1 ポリシロキサン系耐熱性超ハイブリッド材料の開発目標と達成状況

耐熱性材料開発	中間目標	最終目標	到達値	達成状況	コメント
粘度 (Pa·s)	≤ 200	≤ 100	41	◎	制御された表面修飾技術
熱膨張係数 (×10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	≤ 20	≤ 15	50	○	今年度中に達成見込み
貯蔵弾性率低下率 (%) [100×(1-G' <sub>300</sub> /G' <sub>rt</sub> )]	≤ 10	≤ 10	76	○	今年度中に達成見込み
長期耐熱性 (力学強度変化率) (% :250 °C, 100 hrs)	-----	-----	± 0	◎	250°C耐熱材料。日本初

加工性の尺度である粘度については、使用した耐熱性微粒子に適切な表面修飾を施すことにより、未修飾微粒子を使用した材料に比べて大幅な粘度低下（すなわち加工性の向上）が見られ、中間目標を達成した。一方、耐熱性の尺度であるCTEは、現時点では中間目標を達成できていない。

CTEは、加工性（粘度）とトレードオフの関係にある。また、ポリマー成分の架橋密度増加により減少することが知られている。<sup>3)</sup> 一方、上述したように粘度は中間目標値を大幅に下回っている。従って、(1)適切に表面修飾した微粒子の配合量増加により粘度の値を多少犠牲にし、(2)ポリシロキサン成分の架橋密度を増加させることにより、CTEを大きく低下させることは可能であり、中間目標値の達成も視野に入る（図4.3.4-1）。また、貯蔵弾性率低下率についても同様で、ポリマー成分の架橋密度増加により大きく減少することが経験的に知られている。従って、上記(1)、(2)の組み合わせにより、中間目標値の達成は可能と考えられる。

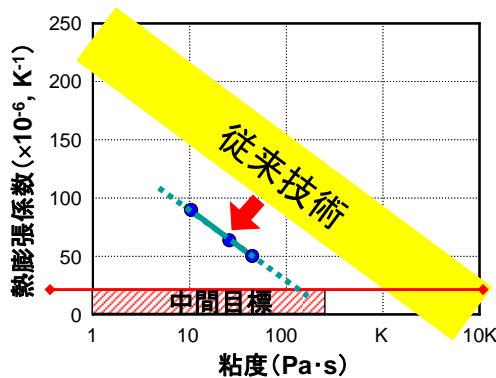


図4.3.4-1 中間目標達成のアプローチ

一方、今回開発中の耐熱性材料については、一定の昇温速度で加熱しながら重量減少を測定する短期耐熱性ではなく、高温下に長時間さらすことによる長期耐熱性が重要である。現在までの試作品は、上述したように耐熱性の尺度であるCTE、貯蔵弾性率低下率については目標値を達成していないが、表4.3.4-1に併せて示したように長期耐熱性は良好である。

さらに、放熱性材料に対する開発目標と達成状況を表4.3.4-2にまとめた。

表4.3.4-2 ポリシロキサン系放熱性超ハイブリッド材料の開発目標と達成状況

放熱性材料開発	中間目標	到達値	達成状況	コメント
粘度 (Pa·s)	≤ 200	800	△	東大での基盤技術の結果を反映して材料化予定
熱抵抗値 (K·cm <sup>2</sup> /W)	≤ 0.03	0.79	△	

初期検討での結果は芳しくなく、中間目標値を達成していない。微粒子表面および粒子径が制御されたナノ粒子を適切に使用することにより、粘度および熱抵抗値の低い放熱性ハイブリッド材料の創製が期待できる。この材料化技術は、東大での基盤技術の結果を待って開始することにした。

今回開発した表面修飾技術は汎用性があり、金属酸化物を使用する種々の機能性ハイブリッド材料に展開可能と考えられる。また、既存のシランカップリング剤を使った表面処理技術では不十分であった粒子にも適用でき、優位性、競争力があると期待される。

#### 4. 3. 5 材料開発検討内容

4. 3. 2項で述べたように、耐熱性微粒子の適切な表面修飾は、ポリシロキサン中への良分散およびハイブリッド材料の粘度低下のためには非常に重要である。一方、粒子径10nm程度の微粒子を使用する限り、ポリシロキサン組成物の粘度が非常に高いため、その微粒子表面修飾を最適化しても加工性の良好なハイブリッド材料を創製することは困難と考えられた。この結果を踏まえ、粒子径を幾分大きくした微粒子および種々の有機ケイ素化合物を使用し、表面修飾微粒子の合成検討を行った。主たる検討項目はa. 微粒子の構造および形状、b. 有機ケイ素化合物の構造、およびc. 反応温度である。また表面修飾反応としては、有機ケイ素化合物—微粒子間の脱水縮合が主反応である。

微粒子表面上の修飾基に関する定量的知見を得るため、加水分解法により表面修飾率を算出した。この値は0.05-3重量%であり、微粒子の構造、粒子径、および表面修飾剤の構造に依存した。

続いて合成した表面修飾ハイブリッド微粒子を使用し、超ハイブリッド材料を調製し、評価した。まず、ハイブリッド材料の粘性に与える種々の因子の影響を調べた。粘度測定結果をまとめて図4.3.5-1に示す。

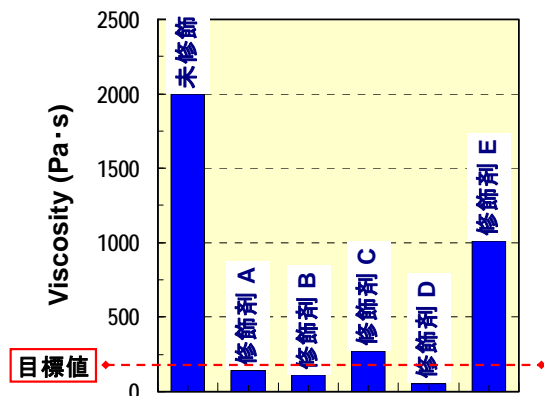


図4.3.5-1 種々の表面修飾ハイブリッド微粒子を使用したハイブリッド材料の粘度

組成物粘度は微粒子の形状および表面修飾剤である有機ケイ素化合物の構造に大きく依存することが確認された。表面修飾率を概算したところ、表面積1nm<sup>2</sup>あたり0.2-1.5個の修飾基がついていることが示唆され、これも大きな因子であることがわかった。ただしこれらの因子の影響をすべて理解できているわけではなく、この理解が最適なハイブリッド微粒子の開発にとって非常に重要である。

さらに、開発したハイブリッド材料の耐熱性を調べた。まず短期耐熱性としてTGA分析を行った。結果を図4.3.5-2に示した。250℃までは重量減少がなく、300℃においても0.1%未満の重量減少であり、耐熱性が良好であることを確認した。ただし、TGAで測定した結果は短期の耐熱性であり、実際の使用可能性判断には不十分である。そのため、オーブン中で一定時間保持して重量減少および材料外観を調べる長期耐熱性を検討した。250℃で100時間加熱後の硬化物外観を図4.3.5-3に示す。加熱後若干黄変が見られたが、分解・変形はなく、力学物性（まげ強度）は保持されることが確認された。従って、この材料の耐熱性は良好であると考えている。

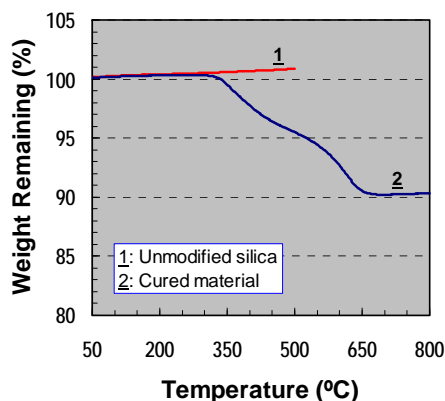


図4.3.5-2 TGAプロファイル (10 °C/min; 空气中)

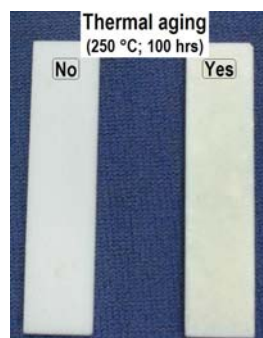


図4.3.5-3 250 °C、100時間加熱後の硬化物外観

#### 4. 3. 6 まとめと今後の課題

前述の通り、組成物粘度とCTEおよび貯蔵弾性率低下率はトレードオフの関係にある。耐熱性微粒子の表面修飾を最適化して低粘度化を図ると同時に、その含有量を増加させ、CTEおよび貯蔵弾性率低下率を減少させる。また、耐熱性微粒子の粒子径制御も必須検討項目である。

より低熱膨張、高弾性率の材料創製のためには、しかしながらこれだけではまだ不十分であり、ポリシロキサン分子設計、すなわち架橋密度を増加させることが必要である。さらに、耐熱性微粒子を硬化反応に組み込むための表面デザイン、および高度な硬化を達成するための硬化条件最適化により、架橋密度が増加し、弾性率低下抑制、熱膨張係数低下につながると考えられる。

#### 4. 3. 7 知的財産の取得および成果の普及

本技術開発で取得した知的財産および他の成果の一覧を表4.3.7-1にまとめた。

表4.3.7-1 知的財産、対外発表、および他の成果

1. 知的財産		
1) ポリシロキサン組成物およびその製造方法	特願2008-327407	ポリシロキサン//表面修飾金属粒子組成物および高温高圧水を利用した製造方法
2) ポリシロキサン組成物およびその製造方法	特願2008-327512	ポリシロキサン//表面修飾金属酸化物粒子組成物および高温高圧水を利用した製造方法
3) ポリシロキサン組成物	明細書作成中	耐熱性に優れたポリシロキサン//表面修飾金属酸化物粒子組成物
2. 論文発表		
1) Supercritical hydrothermal synthesis of silicon-functional metal and metal oxide nanoparticles, <i>Eur. J. Inorg. Chem.</i> , <b>2009</b> , 1619.		
3. 学会発表		
1) 高温高圧水によるポリマー系ナノハイブリッド材料の合成	化学工学会第73年会 (2008-3)	
2) 高温高圧水によるケイ素系ハイブリッド材料の合成	高分子学会第57年次大会 (2008-5)	
3) 高温高圧水を利用したケイ素系材料の無触媒合成	高分子学会第57年次大会 (2008-5)	
4) 高温高圧水を利用したシリカ含有ハイブリッド材料の合成	化学工学会第74年会 (2009-3)	
5) Surface modification of copper nanoparticles with organosiloxanes in supercritical water	9 <sup>th</sup> International Symposium on Supercritical Fluids (2009-5)	
4. その他		
市場の評価を仰ぐため、潜在顧客に第一次開発品を供試		

4. 3. 8 参考文献

- 1) T. Ogawa, et. al., *J. Supercri. Fluids*, **2008**, 45, 80.
- 2) T. Adschiri, et. al., *Ind. Eng. Chem. Res.* **2000**, 39, 4901-7.
- 3) K. Shibayama, et. al., *J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem.* **1965**, 3, 2637.



#### IV. 実用化の見通しについて

##### 1. 実用化の見通し

##### 1. 1. (財) 化学技術戦略推進機構

##### 1. 1. 1. 電気材料分野

##### 1. 1. 1. 1. 実用化のイメージ

本プロジェクトにて開発を行っている封止材、接着剤、絶縁金属基板、放熱シート、接着シートは、パワーデバイスへの適用を考えている（図 1. 1. 1. 1-1）。本プロジェクトにて電気・電子材料及び部材の高性能化が図られ、それを現在の Si パワーデバイスの放熱構造へ用いた場合、さらなる Si パワーデバイスの高出力化を可能とさせる。さらに、Si パワーデバイスより低い電力損失、高速スイッチ、高温動作を示す次世代パワーデバイスである SiC、GaN パワーデバイスの周辺部材としての適用も考えられる。このような高性能化されるパワーデバイスの応用分野のイメージ（図 1. 1. 1. 1-2）としては、運輸関連分野、家電関連製品分野、産業機器分野、照明分野、エネルギー供給用途分野等であり、多くの分野への展開が期待することができ、その影響は非常に大きい。またパワーデバイスの市場規模は 10 兆円（2050）規模となることが予測されており、パワーデバイスに適応した材料開発は非常に期待することができる。

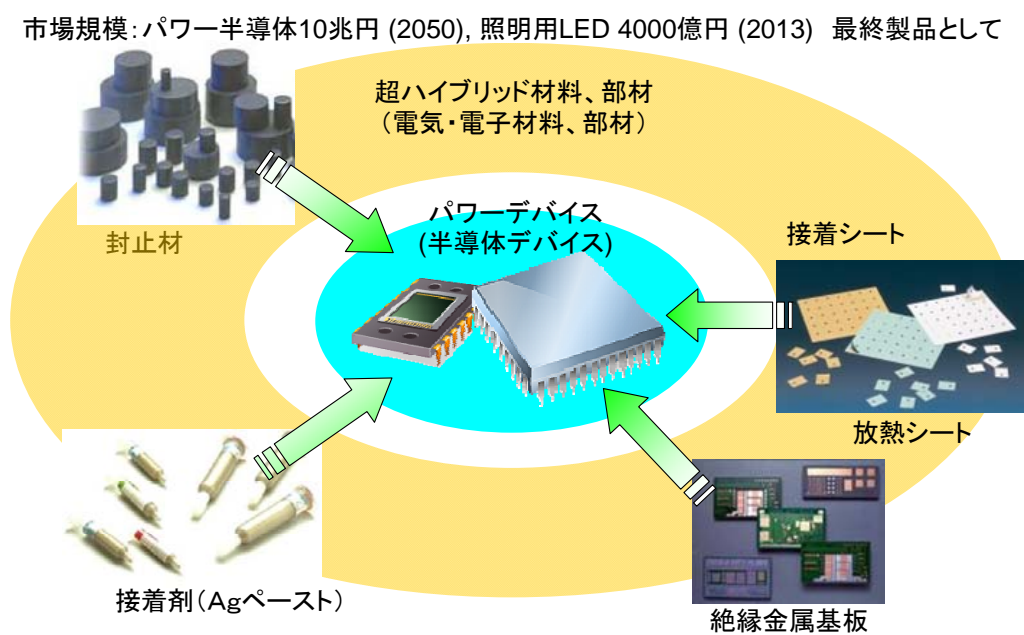


図 1. 1. 1. 1-1 実用化のイメージ 1

市場規模: パワー半導体10兆円 (2050), 照明用LED 4000億円 (2013) 最終製品として

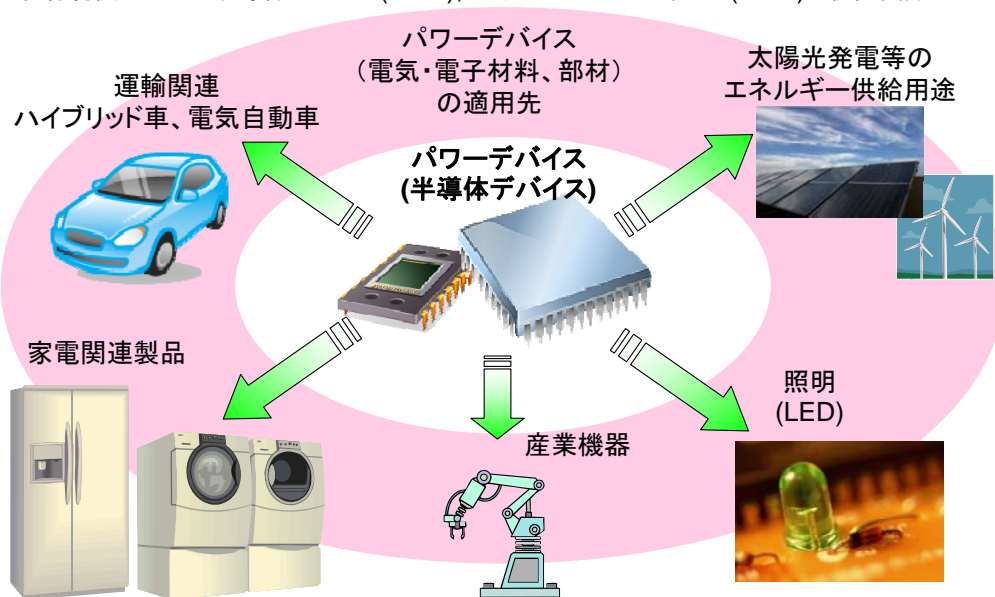


図 1. 1. 1. 1-2 実用化のイメージ 2

1. 1. 1. 2. 実用化までのシナリオ (実用化課題)

本プロジェクトにおける各種開発品の実用化 (サンプル供試) へ進める上での課題として信頼性が挙げられる。各種環境下にて材料の主特性である熱伝導性、絶縁性等が変化しないかを耐熱試験、耐湿試験、ヒートサイクル試験等で確認する必要がある。さらに接着シート及び絶縁金属基板開発品においては機械特性及び接着性という課題が挙げられる。また封止材及び接着剤においては実使用する上で重要となる成形性及び加工性の課題を克服する必要がある。

1. 1. 1. 3. 実用化までのシナリオ (スケジュール)

本プロジェクトにおける開発品の実用化へのスケジュールを図 1. 1. 1. 3-1 に示

CO<sub>2</sub>削減効果: 1億t/年

		2010	2015	2020
電気電子材料	パワーデバイス 周辺材料		実用化 (サンプル供給) → 顧客評価、改良 → システム適用 → 適用拡大 ↓ 量産化	
	ICパッケージ 周辺材料		実用化 (サンプル供給) → 顧客評価、改良 → システム適用 → 適用拡大 ↓ 量産化	
光学材料	光学材料		実用化 (サンプル供給) → 顧客評価、改良 → システム適用 → 適用拡大 ↓ 量産化	
プロセス	超臨界技術	大量合成技術 確立	システム改良、適用分野拡大 →	

図 1. 1. 1. 3-1 スケジュール

した。各開発品の課題を克服後にユーザー企業へサンプル供試し、実用化を図る。さらにサンプル供試後にユーザー企業と技術討論を繰り返し、要求特性のカスタマイズ化を行う。またユーザー企業でのモジュール化した際の信頼性評価後に材料供給体制が間に合うよう量産体制を確立する。

#### 1. 1. 1. 4. 波及効果

本プロジェクトにおいて樹脂複合材である電気・電子材料部材を実用化することによって、パワーモジュールの高性能化、小型化、低コスト化につながり、次世代パワーデバイスの適用拡大を推し進めることが可能と考えられる。この次世代パワーデバイスの適用拡大は、輸送機器分野だけではなく、建築分野、エネルギー分野等への波及も見込まれ、省エネルギー化、CO<sub>2</sub>排出削減へ大きく貢献する。1つの例として、パワーデバイスを用いることによるハイブリッド自動車及び電気自動車へのガソリン自動車からの置き換えにおいて、年間約1億tものCO<sub>2</sub>の排出量の削減につながる予測が示されている。

#### 1. 1. 2. 光学材料分野

##### 1. 1. 2. 1. 実用化のイメージ

超ハイブリッド技術を光学材料分野に応用することにより、従来のプラスチック製光学材料を越え、『ガラス領域に迫る特性』を発現し、かつ『易加工性を維持』した新領域の光学材料を提供することを目指す。主な材料ターゲット領域としては、反射防止材料関連などの薄膜系光学材料およびレンズやLED封止剤などのバルク系光学材料などである。この事により、加工プロセスのエネルギー的負荷の大きな従来の光学ガラス材料分野においては、ある程度材料代替が可能となると考えられる。更には価格面、光学特性面、加工特性面で既存材料では対応できなかった領域に対しても材料展開が可能となるため、新たな材料市場の形成も可能となると考えられる(図1.1.2.1-1)。

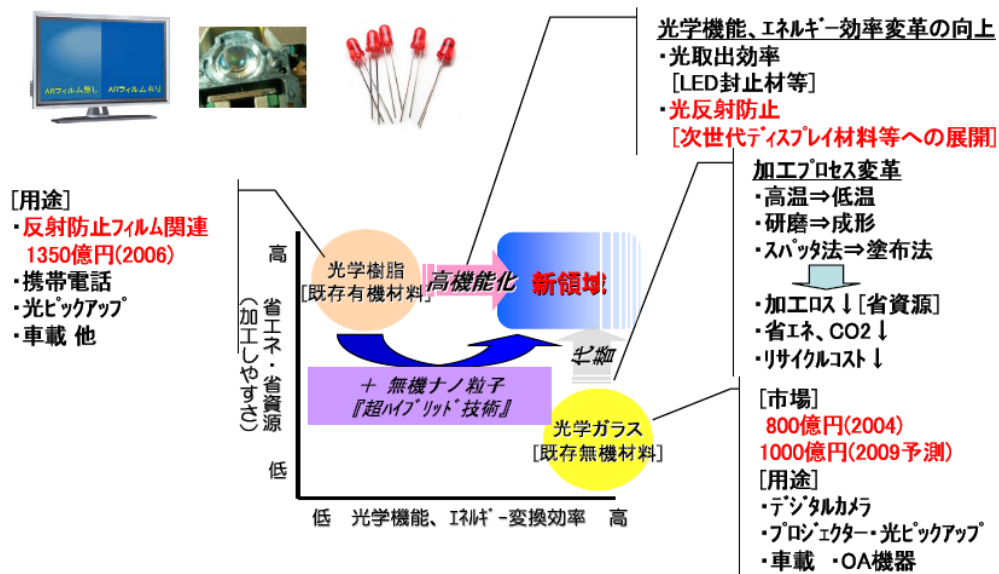


図 1. 1. 2. 1-1 実用化のイメージ

## 1. 1. 2. 2. 実用化シナリオ

### (1) 薄膜材料：フィルム、コーティング等

高・低屈折率材料技術をベースにしてフラットパネルディスプレイ (FPD) 分野の商品開発を志向する。中でも特に LCD や PDP 等のディスプレイ向け反射防止フィルムに焦点を絞る (2006 年度における反射防止フィルム関連市場：1350 億円)。

FPD の大型化や高精細表示ニーズに対応できる反射防止フィルムの高性能化を本超ハイブリッド技術により耐久性や屈折率等の諸物性バランスを高次元で達成し、既存の無機系材料から有機系材料への転換を加速する。この事は即ち、従来のエネルギー消費型 Dry 法から環境負荷の小さな wet 法への変革も意味するものである (図 1. 1. 2. 2-1)。

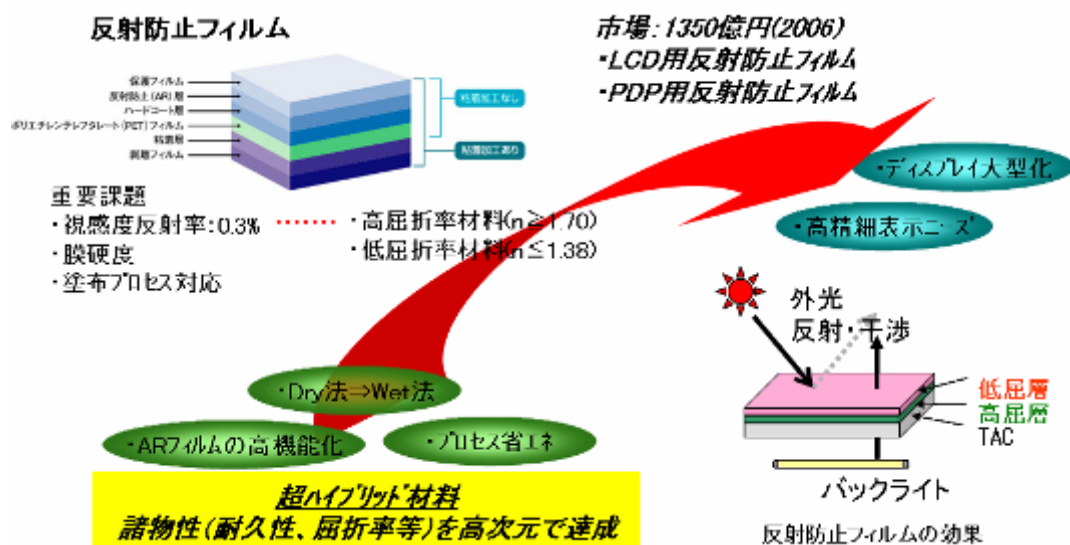


図 1. 1. 2. 2-1 実用化シナリオ  
(薄膜材料：フィルム、コーティング等)

### (2) バルク材料：レンズ、封止材等

主な想定用途としては、LED 封止材料、プラスチック光学レンズ材料、イメージセンサ用マイクロレンズ関連材料などのバルク系材料を想定している。共通する重要な材料ニーズは高屈折率化であり、本超ハイブリッド技術によりソリューションを提供する (図 1. 1. 2. 2-2)。

LED 封止材料では高屈折率化により光の取り出し効率向上が期待できる。同時に信頼性、耐久性の維持が必要とされる。市場規模予測としては 2010 年に樹脂として 105 トン、94 億円、2013 年に樹脂として 560 トン、240 億円程度と考えられている。

プラスチック光学レンズ材料では高屈折率化により、レンズ自体およびその周りの機械部分の小型軽量化やコスト低減が可能になる。高アッベ数、耐久性などの付帯性能が必要とされる場面も多い。市場規模予測としては 2010 年に樹脂として 4700 トン 110 億円、2013 年に 5300 トン 125 億円と考えられている。

イメージセンサ用マイクロレンズ材料および平坦化材では高屈折率化により、レンズの集光効果の向上が期待でき、イメージセンサの感度向上が期待できる。付帯性能に関してはレンズと同様。市場規模予測としては 2010 年に樹脂として 11.5 トン、14.5

億円、2013年に16トン、20億円と考えられている。



図 1. 1. 2. 2-2 実用化シナリオ  
(バルク材料：レンズ、封止材等)

(3) 開発スケジュール

全5年間の本プロジェクト期間中は、基本技術開発や材料ポテンシャル把握等の基礎検討に重点を置き、ユーザー企業との連携のもとで活きた市場情報の収集を進める。

次の段階は具体的な商品化研究フェーズであり、付帯要求特性値達成、材料構成最適化、低コスト化検討などがその中心となると考えられる。重要と思われる付帯要求特性項目としては、薄膜材料系では対候性、最小反射率、密着性などが想定され、対してバルク材料系では色分散、複屈折、耐熱、寿命、吸水性などが想定される。また加工性という観点では、薄膜材料系では最適なWetプロセス条件開発、バルク材料系では成型加工性(射出成型性など)が重要なポイントになるとと思われる。

開発の最終段階が量産体制構築フェーズであり、事業構造形成、生産設備建設、品質管理体制構築などの検討が必要になるとと思われる(図1.1.2.2-3)。

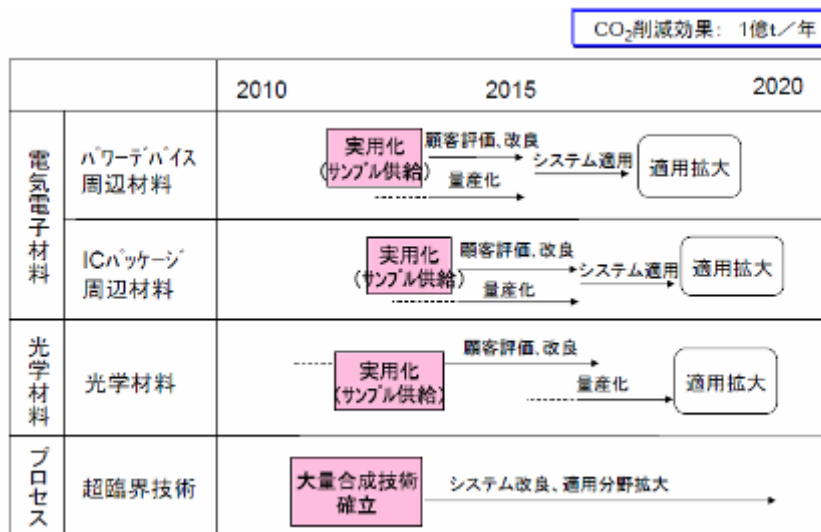


図 1. 1. 2. 2-3 スケジュール

1. 1. 2. 3. 波及効果

本プロジェクトの成果は、光学材料分野における無機系材料から有機系材料への大規模な材料転換をもたらす事が期待される。反射防止分野やレンズ分野などにおける加工性に優れた有機系材料への転換は、加工プロセスに変革をもたらし、コスト低減を経由して、更なる材料適用領域・市場の拡大をも誘起する事が考えられる。

また LED 関連やディスプレイ関連においては、本プロジェクトの成果により、既存有機系材料の大幅な性能拡大が期待でき、デバイスとしてのエネルギー効率の向上にも大きく貢献しうるものである。

これら波及効果を、例えば省エネルギーというキーワードで試算したとするならば、原油換算 259 万 kL レベル、CO<sub>2</sub> 削減効果として 679 万 ton レベルという試算結果も得られている（石油連盟、京都府、電気事業連合会、日本電球工業会、パナソニック各資料より試算）。

1. 1. 3. 基盤技術

1. 1. 3. 1. 波及効果

基盤技術である超臨界水ナノ粒子合成の装置ロードマップを図 1. 1. 3. 1-1 に示した。通液部のクリーン化及び腐食対策をすることでコンタミネーションを削減でき、更に混合部での閉塞対策をすることで連続合成及び連続修飾が可能になる。また、大量合成および大量修飾に必要なスラリー投入システムおよび全量回収システム、回収後の濃縮・分離を一貫して行えるようシステム化を計ることで電気・電子材料分野及び光学材料分野だけでなく、他の用途への超臨界水ナノ粒子合成装置の展開が考えられる。例えば、超臨界法の特徴が活かせる宇宙航空・運輸分野、住宅・建築分野、IT 情報分野、エネルギー分野等が挙げられ、その波及効果は計り知れないものがある（図 1. 1. 3. 1-2）。



図 1. 1. 3. 1-1 超臨界水ナノ粒子合成装置のロードマップ



図 1. 1. 3. 1-2 波及効果

## 1. 2 三菱化学（株）

情報電子機器の小型・高集積化、自動車の環境負荷低減、燃費向上を目的とした取り組みが盛んに行なわれ、機器の省エネ、高効率化を達成するための方策として、実装部品の高密度化やハイブリッドカーの更なる高性能化が検討されている。これに伴い、機器が発する単位体積あたりの発熱量は増加する傾向にある。従来、放熱対策のためにはアルミニウムやマグネシウムなどの金属系材料が多用されてきた。より安価で成形加工性に優れたプラスチック系の複合材料で放熱性の高い材料を作製できれば、材料コストの低減はもとより、機器の軽量化にもつながるため、熱伝導性樹脂複合材料のニーズは多い（図1. 2-1）。既に一部の材料（放熱シート）で、ある程度の市場が形成されている。熱を伝える媒体として自由電子を用いた導電性放熱材料は既知の材料として数多く上市されているものの、特に増加傾向にある電子機器周りで使用可能なフォノン伝導を利用する絶縁性放熱材料については、未だ熱伝導性が低いレベルにあり、絶縁性で高い放熱特性（3~8W/(m・K)）を併せ持つ材料は各社開発段階にある。さらに将来的には、熱伝導率を大幅に改善することによって金属あるいはセラミックス代替まで視野に入れた製品も切望されている（図1. 2-2）。

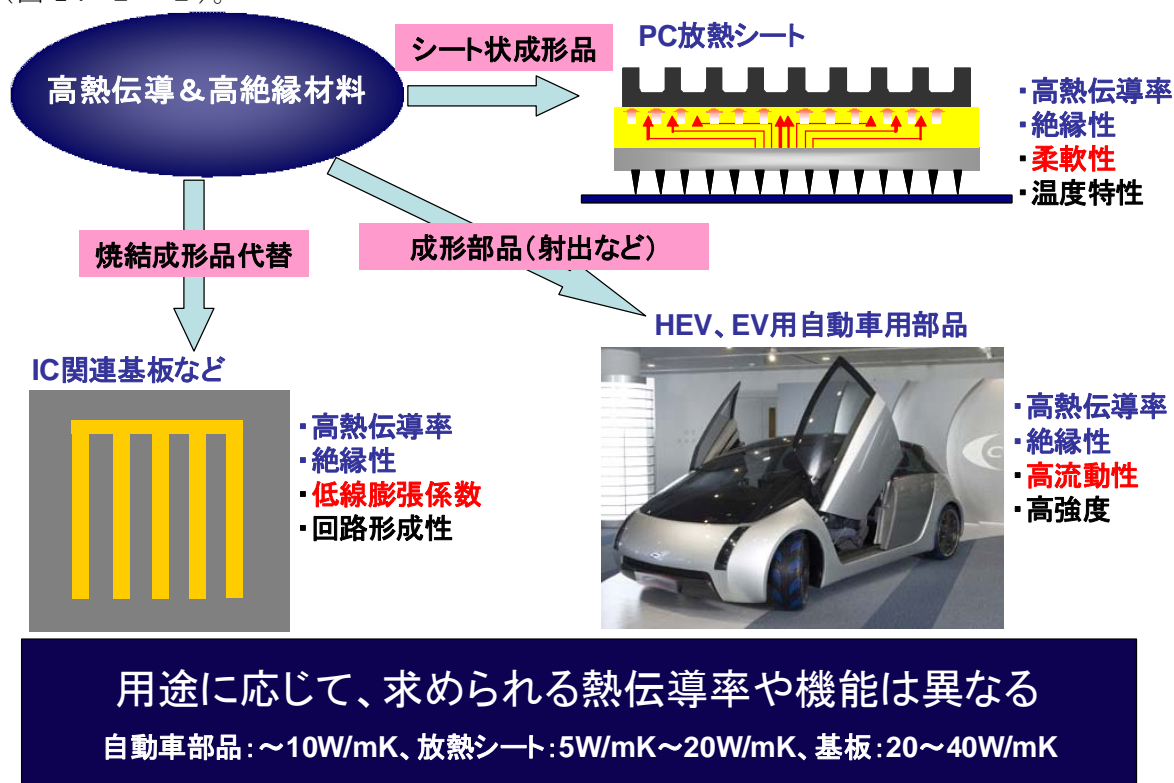


図1. 2-1 各種の絶縁・高熱伝導材料用途



## 自動車用機器、情報・通信端末、ゲーム機、家電などの高性能化

発熱部はチップ集積部、モーター部などに集中  
電氣的な絶縁性・高い放熱を求める分野が増加

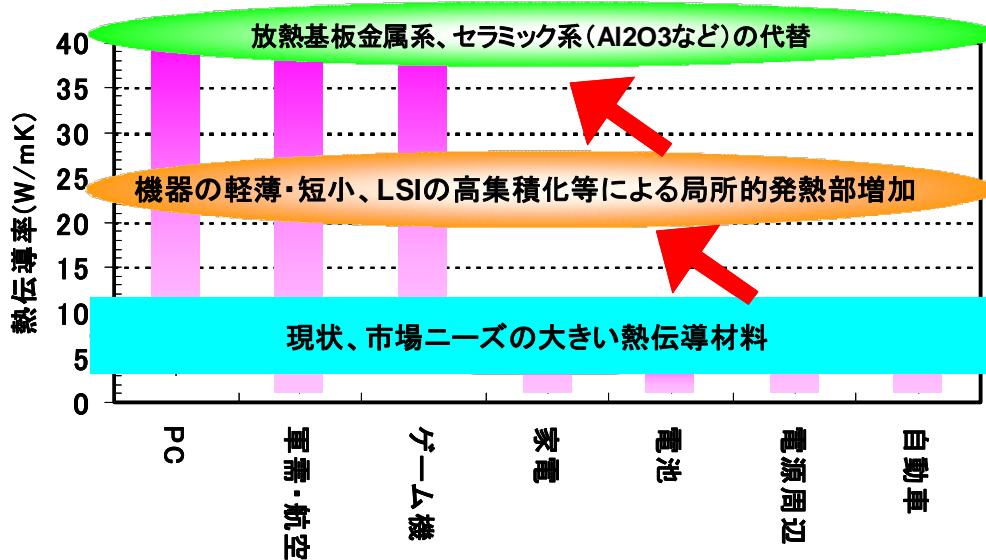


図1. 2-2 現段階での分野毎の熱伝導材料ニーズ

超ハイブリッド材料開発では、複合材料中に占めるフィラーの充填量と成形加工性の相反機能を達成する技術開発を行っている。このような状況下、特に熱伝導性の高いBN系フィラーを用いることで複合材料として中間目標である熱伝導率 (20W/(m·K)) と易成形加工性を両立可能な系が見出されている。そこで、これら熱伝導材料の実用化を念頭に、どのような性能の材料が現時点で市場要求性が高いのかを把握するために、具体的なメーカーでのニーズ調査を行った。その結果、5~10W/(m·K) 付近の熱伝導材料がさまざまな製品形態、分野で要望されていることが分かった。特に柔軟性などが要求される放熱シートは既に市場が形成されていることもあり、本研究で得られた絶縁・高熱伝導材料の早期事業化には最適と考えている。各開発パートの技術を集積することで各種の要求性能に合わせた配合最適化を行うことも可能と考えられる。この場合、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  異方性フィラーやマトリックス樹脂としての液晶性エポキシ樹脂は初期成果出口としての利用可能性は必ずしも高くはないが、前述したように製品としての要求性能は絶縁・高熱伝導性とともにより製品強度なども必要となるため、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  異方性フィラーの開発、フィラー樹脂界面制御のための表面修飾技術およびフィラー間熱抵抗低減のための樹脂マトリックス高熱伝導率化は必須の要素技術になると予想している。このような状況を踏まえて、実際の実用化については次のような見通しを持っている (図1. 2-3)。

- 開発した複合材料にて 5~10W/(m·K) 付近の市場ニーズに合わせた製品 (例えば放熱シート) の事業化を優先して考える。
- さらに機械的強度などを要求されるような分野へ異方性フィラーの特徴などを生かして製品化を目指す。
- 将来的に従来の複合材料では到達が困難であった超高熱伝導複合材料分野の製品開発を本検討で開発した技術を駆使して行う。

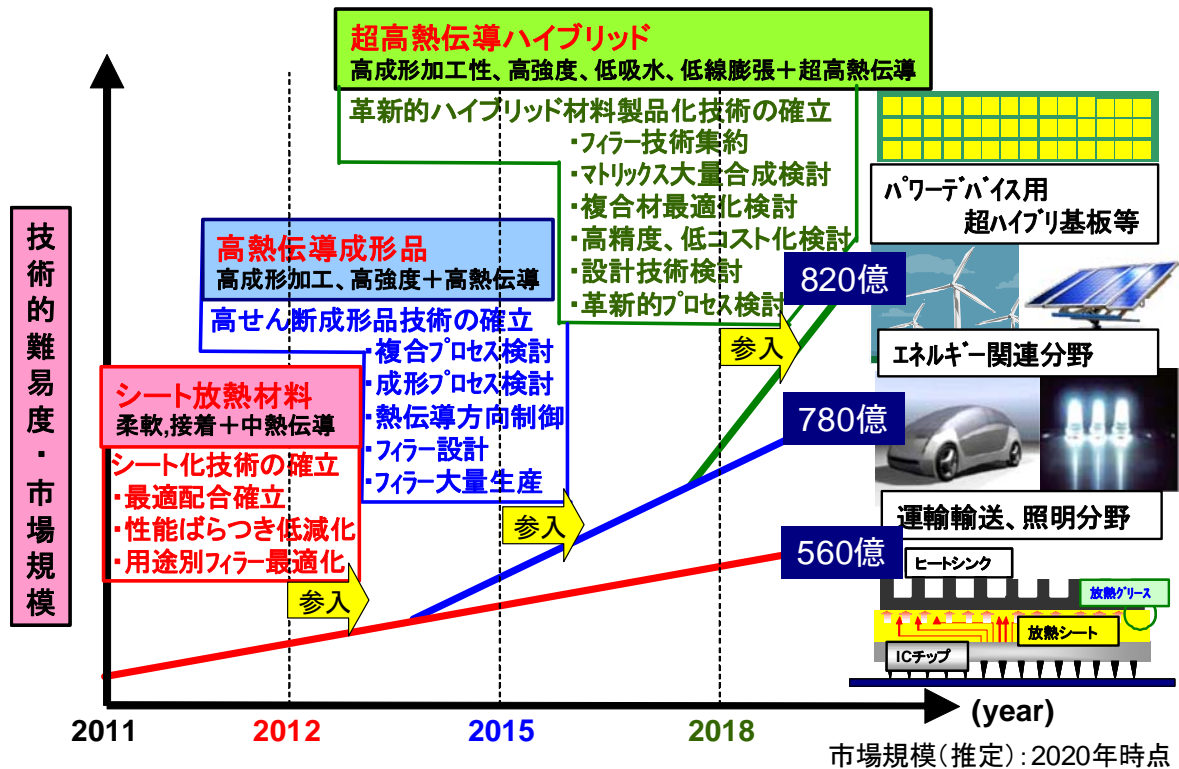


図1. 2-3 絶縁・高熱伝導材料の実用化スケジュール

#### 波及効果について

実用化検討の初期には、情報端末機器などの比較的小型の製品について検討する。しかし、地球温暖化対策や省エネルギー化が進めば熱マネジメントを必要とする分野は、輸送機器分野、建築分野にまで広がると予想している。すなわち、輸送機器分野の代表である自動車や鉄道、さらには航空機のエンジン、ボディにまで採用される可能性がある。エネルギー分野では、特に太陽電池分野で、熱による発電効率低下などを抑制されるために採用される部材も増えてくると予想している。また、照明分野でもLEDの発する熱の対策用製品なども今後ますます増えるであろう(図1. 2-4)。加えて、化粧品、塗料などの機能性粉体の分野にも波及することが考えられる。現在の熱伝導材料の市場は500億円前後であるが、これら多方面の分野へ適用されれば、数千億円の市場になるものと予想している(図1. 2-5)。

		2010	2015	2020
輸送機器分野	バス トラック	成型部品 実用化	材料試験 要素試験 → 試作車の 試運用	実用化
	鉄道車両	成型部品 実用化	材料試験 要素試験 → 試作車の 試運用	実用化
建築分野	LED等 新照明 システム	シート実用化  成型部品 実用化	材料試験 → システム構築 検討	実用化
エネルギー	発電 システム	成型部品 実用化	材料試験 → システム構築検討  ↑ 超高熱伝導 基板	実用化

図1. 2-4 推定される各分野への波及時期

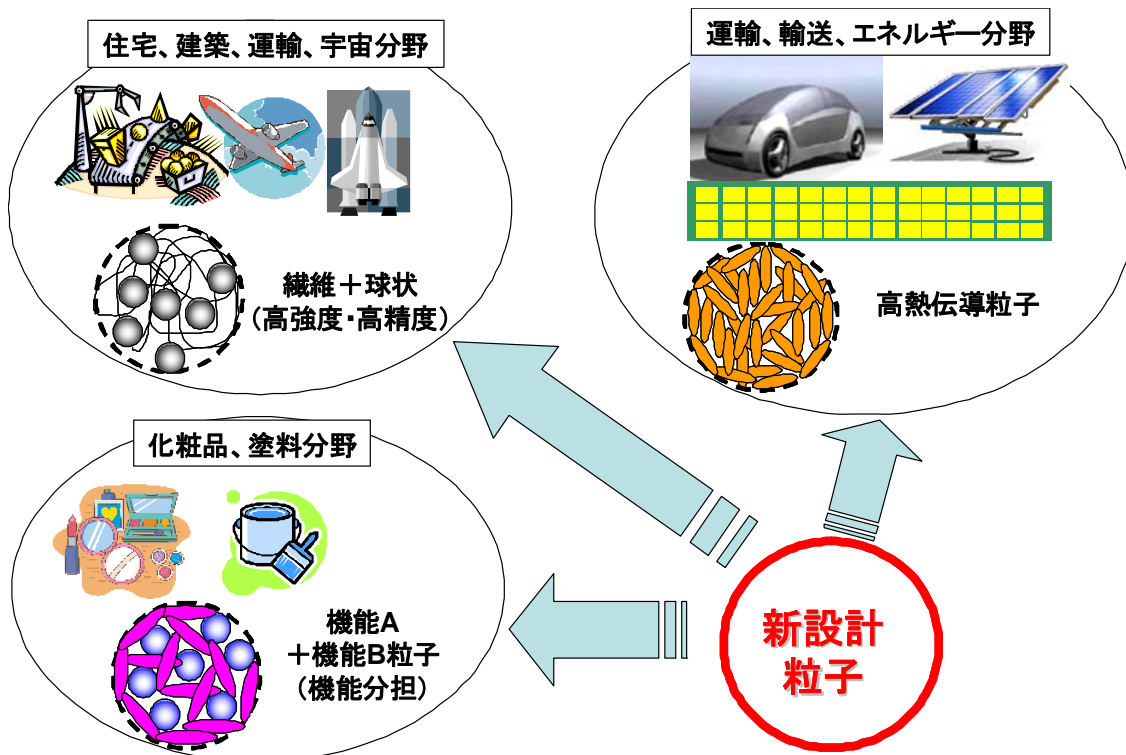


図1. 2-5 各分野への波及効果

#### IV. 実用化の見通しについて

##### 1. 3 東レ・ダウコーニング (株)

##### 1. 3. 1 実用化のイメージ

本研究開発では、次世代耐熱性封止材料をターゲットにしたが、想定している主要用途は SiC 基板用封止材料である。SiC 素子は高温での動作が可能のため、冷却機器の小型化が可能となり、その結果デバイスの小型化が可能となるため、次世代技術として大いに期待されている。ただし、その封止用材料の開発なしには SiC 素子の魅力を活かしきれないため、高耐熱性封止材料の需要は大きい。その市場規模は、2015 年で 30-50 億円と予測される。SiC 素子を組み込んだデバイスの典型的な応用例はインバーターであり、一例を図 1-3-1-1 に示す。インバーターの用途は幅広く、図 1-3-1-2 に示したように、電動自動車、白物家電、発電設備等での使用が期待されている。



図 1. 3. 1 - 1 小型化された SiC インバーターの一例

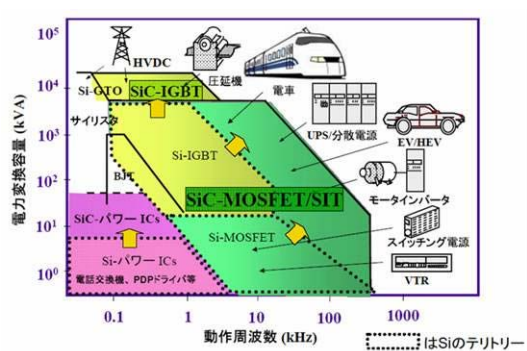


図 1. 3. 1 - 2 次世代パワー IC の用途展開

##### 1. 3. 2 実用化のシナリオ

2009 年 7 月に最初の試作品を顧客に提出するが、その評価結果が良好であれば、ほぼシナリオ通りのスピードで材料開発が可能と考え、2013 年ころには実用化可能と予定している。製品の形態であるが、250 °C の連続使用に耐えうる業界初のペースト状硬化性材料となることを期待している。

##### 1. 3. 3 波及効果

本研究開発による波及効果は二点あると考えている。第一は、含ケイ素有機基表面修飾技術を多種の金属、金属酸化物に応用し、種々の機能性ポリシロキサン系ハイブリッド材料を創製し、新規ビジネスを開拓することである。放熱性材料はその代表例である。第二は、本耐熱性封止材を利用して超低抵抗のパワーデバイスを開発し、広範囲の用途に組み

込むことにより、電力ロスを低減し、省エネルギーを達成することである。エンジニアリング振興協会によれば、この低減により、日本だけでも原発 4 基分の省エネ効果がある。

## V. 成果資料

### 1. 各種展示会での成果の発表

大学・法人・企業名	展示内容
(株)アイテック	2007年後期 化学工学会（2007年9月12～15日） 超臨界水ナノ粒子合成技術の紹介 流通式粒子表面改質装置カタログ展示
(株)アイテック	びわ湖ビジネスメッセ2007（2007年10月24～26日） 超臨界水ナノ粒子合成技術の紹介 流通式粒子表面改質装置カタログ展示
(株)アイテック	先端材料展 INCHEM TOKYO 2007（2007年11月6～9日） 超臨界水ナノ粒子合成技術の紹介 流通式粒子表面改質装置（MOMI 超）展示
(株)アイテック	大阪ビジネスエキスポ2008（2008年5月22・23日） 超臨界水ナノ粒子合成技術の紹介 流通式粒子表面改質装置カタログ展示
(株)アイテック	特許流通シンポジウムin大阪（2008年9月12日） パネリストとして参加 超臨界水熱合成技術の紹介及び事業化について発表
(株)アイテック	2008年後期 化学工学会（2008年9月24～26日） 超臨界水ナノ粒子合成技術の紹介 流通式粒子表面改質装置カタログ展示
(株)アイテック	大阪府内中小企業とシャープ(株)とのビジネスマッチング商談会 （2008年10月23・24日） 超臨界水ナノ粒子合成技術の紹介 小型流通式粒子表面改質装置（MOMI 超ミニ）展示
(株)アイテック	「大阪ものづくり優良企業賞2008」（2008年11月28日） 超臨界水熱ナノ合成技術で特別賞を受賞
(株)アイテック	nano Tech 2009 国際ナノテクノロジー総合展（2009年2月18～20日） 超臨界水ナノ粒子合成技術の紹介 小型流通式粒子表面改質装置（MOMI 超ミニ）展示
(株)アイテック	2009年 元気企業大交流会inあまがさき（2009年3月19日） 東大阪市、尼崎市、大津市、堺市 商工会議所主催 堺市企業代表として、超臨界水熱ナノ粒子合成技術発表

㈱アイテック	「2009年元気なモノ作り中小企業 300 社」（2009年 4 月 24 日） 超臨界水熱ナノ合成技術で 300 社に選定される。
㈱アイテック	さかいIPC press 2009年 7 月号に、超臨界水熱合成技術、ナノ粒子合成技術及び小型流通式粒子表面改質装置（MOMI 超ミニ）が紹介される。
電気化学工業(株)	' 08. 4 月 FPD 部品・材料 EXPO
電気化学工業(株)	' 08. 5 月 上海 LED 展
電気化学工業(株)	' 09. 4 月 広州 LED 展
電気化学工業(株)	' 08. 10 月 FPD International 2008
電気化学工業(株)	' 09. 4 月 次世代照明技術展
電気化学工業(株)	' 09. 7 月 上海 LED 展（予定）
JCII	2009. 10 東北大 GREEN CHEMISTRY ポスター参加 7 件 予定
JCII	2009. 11 INCHEM TOKYO 2009 展示参加予定
長岡技術科学大学	JST 新技術説明会に(2009. 5. 19 at JST ホール) にてナノセラミックスに関する研究内容を企業のニーズ発掘を希望する研究者、技術者に発表した。
長岡技術科学大学	国際セラミックス総合展(4 月 8 日～ 10 日 東京ビックサイト) を実行委員会 委員長として主催し、有機無機ナノハイブリッド材料に関する研究成果を発表した。

東京工業大学	東工大「すずかけ祭」(H21年5月9～10日)における特設：『東工大新技術コーナー』で“高蛍光性ポリイミドとポリイミドハイブリッド材料”のブース展示(東工大安藤研究室)
三菱化学㈱	Supergreen 2009 - International Conference on Supercritical Fluid - (東北大学片平キャンパスさくらホール、2009.10.15～17) 高熱伝導材料のサンプル出典 (予定)
三菱化学㈱	INCHEM TOKYO 2009(東京ビッグサイト、2009.11.18～20) 高熱伝導材料のサンプル出典 (予定)

## 2. 新聞、雑誌記事

No	掲載紙	年月日	内容
1	日本経済新聞	2008/8/12	他社 済済 アイテック 超臨界応用第3の柱に
2	日刊工業新聞	2008/10/21	Business&Technology 超臨界水使いナノ粒子合成
3	日刊工業新聞	2009/1/27	大阪ものづくり優良企業賞2008
4	高知新聞	2007/9/5	無機・有機ナノ粒子 初のハイブリッド化
5	未来材料	2007/10/10	超臨界水熱条件下での有機無機ナノ粒子合成・完全分散
6	未来材料	2008/07/10	透過型電子顕微鏡を利用した3次元解析
7	月刊ケミカルエンジニアリング	2008/3/1	プラズマによるナノ複合材料の合成
8	化学工業	2008/4/1	次世代シングルナノ触媒の開発

## 3. 論文リスト

○ (財)化学技術戦略推進機構、(独)産業総合研究所、東北大学、東京工業大学、長岡技術科学大学、九州大学

No	著者	所属	題名	雑誌等の名称	巻・号・ページ	研究開発項目
1	Atsushi Sugie, Takashi Somete, Kiyoshi Kanie, Atsushi Muramatsu, Atsunori Mori	東北大 多元研	Triethylsilane as a Mild and Efficient Reducing Agent for the Preparation of Alkanethiol-capped Gold Nanoparticles	Chemical Communications	2008(33) 3882-3884	①, ②



2	依藤大輔・安藤慎治	東工大		日本ポリイミド・芳香族系高分子会議要旨集	17(1), P-2 (2008)	②
3	Salomon E. Borjas Garcia, Katsutoshi Yamamoto and Atsushi Muramatsu	東北大	Synthesis of Ti-Beta via mechanochemical route	Journal of Materials Science	43, 2367-2371, <u>2007</u>	①, ②
4	Keiichi Murai, Yoshinori Tokoi, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang, Kiyoshi Yatsui, and Koichi Niihara	長岡岐大	Particle Size Controllability of Ambient Gas Species for Copper Nanoparticles Prepared by Pulsed Wire Discharge	Jpn. J. Appl. Phys		③
5	Tahereh Mousavand, Jing Zhang, Satoshi Ohara, Mitsuo Umetsu, Takashi Naka, Tadafumi Adschiri	東北大	Organic-ligand-assisted supercritical hydrothermal synthesis of titanium oxide nanocrystals leading to perfectly dispersed titanium oxide nanoparticle in organic phase	Journal of Nanoparticle Research	9, 1067-1071 (2007.10)	①②③
6	Byrappa, K., Adschiri, T.	東北大	Hydrothermal technology for nanotechnology	PROGRESS IN CRYSTAL GROWTH AND CHARACTERIZATION OF MATERIALS	53, 117-166 (2007)	①②③
7	蟹江澄志, 村松淳司	東北大	微粒子液晶化による有機無機ハイブリッド液晶の開発	化学工業	58(11), 865-871 (2007)	① ② ③
8	Kiyoshi Kanie, Atsushi	東北大	Liquid-Crystalline Inorganic Nano- and	Elsevier	509-515 (2007)	① ② ③

	Muramatsu		Fine-Particles			
9	阿尻雅文	東北大	最近の科学工学58 超臨界流体技術の実用化最前線，総論 超臨界流体とナノテクノロジー—有機無機ハイブリッドナノ材料創製—	化学工学会編 化学工業社	26-36(2007)	③
10	阿尻雅文	東北大	水その不思議な世界—私たちの星を守るために，超臨界水を利用したハイブリッド分子合成	山崎仲道編 高知新聞社	104-106(2007)	②③
11	名嘉 節，有田稔彦，阿尻雅文	東北大	ナノ粒子における電子材料・光学材料への応用，第2章 第2節 超臨界合成法による粒径制御	情報技術協会	(2007. 11)	①②③
12	蟹江澄志，村松淳司	東北大	有機無機ハイブリッド液晶：微粒子液晶化による機能性マテリアルの創製に向けて	液晶	11(1), 54-62(2007)	①，②
13	村松淳司，蟹江澄志	東北大	ゾルーゲル法および有機無機ハイブリッド材料—構造制御・高性能化とその応用—	技術情報協会	378-390(2007)	①，②
14	金子賢治，北脇高太郎，伊野家浩司，A. B. Hungria，P. A. Midgley，張静，大原智，阿尻雅文	東北大 九州大	水熱合成法により生成したCeO <sub>2</sub> ナノ粒子の構造・形状解析	日本金属学会誌 まてりある	第46巻第12号 787頁	④
15	T. Kaino	東北大	Polymer waveguide photonic integrated circuits	SPIE Photonics West 2008	6897-26(2008)	②
16	T. Kaino	東北大	Polymer waveguide fabrication with 3D structure by two-photon absorption	SPIE Photonics West 2008	6899-10(2008)	②

			assisted polymerization			
17	T. Kim, K. Komatsu, O. Sugihara, T. Kaino, H. Kudo, and T. Nishikubo	東北大	Optical properties of calixarene polymers	SPIE Photonics West 2008	6891-12 (2008)	②
18	Y. Kurata, M. Tokutake, K. Komatsu, O. Sugihara, N. Kambe, and T. Kaino,	東北大	Thermo-optic coefficients of hybrid polymer with titanium dioxide nanoparticles	SPIE Photonics West 2008	6891-21 (2008)	②
19	Takashi Minagawa, Koji Suwa, Tadachika Nakayama, Tuneo Suzuki, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang and Koichi Niihara	長岡岐 大	Fabrication of silver nanostructures by an underwater laser ablation method	Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnolog ies	19 - 22, June, 2007	③
20	J. Zhang, S. Ohara, M. Umetsu, T. Naka, Y. Hatakeyama, T. Adschiri	東北大	Novel Approach to Colloidal Ceria Nanocrystals: Tailor-made Crystal Shape in Supercritical Water	Advanced Materials,	19, 203-2 06(2007)	①②③
21	M. Atashfaraz, M. Shariary-Niassar, S. Ohara, K. Minami, M. Umetsu, T. Naka, T. Adschiri	東北大	Effect of titanium dioxide solubility on the formation of BaTiO <sub>3</sub> nanoparticles in supercritical water	Fluid Phase Equilibria,	257, 233- 237(2007)	①②③
22	D. Rangappa, S. Ohara, T. Naka, A. Kondo, M. Ishii, T adschiri	東北大	Synthesis and organic modification of CoAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> nanocrystals under supercritical water conditions	Journal of Materials Chemistry,	17, 4426- 4429(200 7)	①②③
23	Dinesh Rangappa, Takashi Naka, Akitsugu Kondo, Masahiko Ishii,	東北大	Transparent CoAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> Hybrid Nano Pigment by Organic Ligand-Assisted Supercritical Water	Journal of the American Chemical Society,	129(36), 11061-11 067(2007)	①②③

	Toshikatsu Kobayashi, Tadafumi Adschiri					
24	J. Zhang, S. Ohara, M. Umetsu, T. Naka, Y. Hatakeyama, T. Adschiri	東北大	Novel Approach to Colloidal Ceria Nanocrystals: Tailor-made Crystal Shape in Supercritical Water	Nano Letters,	7(2), 421-425 (2007)	①②③
25	T. Mousavand, S. Ohara, M. Umetsu, J. Zhang, S. Takami, T. Naka, T. Adschiri	東北大	Hydrothermal synthesis and in situ surface modification of boehmite nanoparticles in supercritical water	The Journal of Supercritical Fluids,	40, 397-401 (2007)	①②③
26	Ehrentraut Dirk, Miyamoto Miyuki, Sato Hideto, Riegler Juergen, Byrappa K., Fujii Katsushi, Inaba Katsuhiko, Fukuda Tsuguo, Adschiri Tadafumi	東北大	Simple processing of ZnO from solution: Homoeptaxial film and bulk single crystal	Crystal Growth & Design,	8(8), 2814-2820 (2008)	②③
27	Ohara Satoshi, Mousavand Tahereh, Sasaki Takafumi, Umetsu Mitsuo, Naka Takashi, Adschiri Tadafumi	東北大	Continuous production of fine zinc oxide nanorods by hydrothermal synthesis in supercritical water	Journal of Materials Science,	43(7), 2393-2396 (2008)	②③
28	Rangappa Dinesh, Ohara Satoshi, Umetsu Mitsuo, Naka Takashi, Adschiri Tadafumi	東北大	Synthesis, characterization and organic modification of copper manganese oxide nanocrystals under supercritical water	Journal of Supercritical Fluids,	44(3), 441-445 (2008)	②③
29	K. Byrappa, S. Ohara, T. Adschiri	東北大	Nanoparticles synthesis using supercritical fluid technology - towards biomedical applications	Advanced Drug Delivery Reviews,	60(2), 299-327 (2008)	②③
30	K. Byrappa, T. Adschiri	東北大	Novel routes of advanced materials processing and applications	Journal of Materials Science,	43(7), 2083-2084 (2008)	①②③
31	阿尻雅文	東北大	超ハイブリッド材料技術開発－相反機能発現	工業材料,	59(1), 60-61 (2009)	①②③

			材料の開発ー		.1)	
32	大原智, 梅津光央, 名嘉節, 高見誠一, 阿尻雅文	東北大	超臨界流体技術の開発と応用, 第2章 超臨界流体を用いる微粒子・有機合成技術、6. 超臨界水を用いたナノ粒子製造	シーエムシー出版,	56-61 (2008)	①②③
33	Mousavand T, Naka T, Sato K, Ohara S, Umetsu M, Takami S, Nakane T, Matsushita A, Adschiri T	東北大	Crystal size and magnetic field effects in Co304 antiferromagnetic nanocrystals	PHYSICAL REVIEW B	79(14), 2009	②③
34	T. Onodera, Y. Takaya, T. Mitsui, Y. Wakayama, H. Oikawa	東北大・物材機構	Ordered Array of Polymer Microspheres on Patterned Silicon Substrate Fabricated Using Step-by-Step Deposition Method	Japanese Journal of Applied Physics	47(2), 1404-1407 (2008)	②
35	T. Mitsui, Y. Wakayama, T. Onodera, Y. Takaya, H. Oikawa	物材機構・東北大	Light Propagation through Colloidal Crystal Wire Fabricated by Dewetting Process	Nano Letters	8(3), 853-858 (2008)	②, ③
36	T. Mitsui, Y. Wakayama, T. Onodera, Y. Takaya, H. Oikawa	物材機構・東北大	Observation of Light Propagation across a 90°-corner in Chains of Microspheres on Patterned Substrate	Optics Letters	33(11), 1189-1191 (2008)	②, ③
37	三井正, 若山裕, 小野寺恒信, 高谷洋輔, 及川英俊	物材機構・東北大	微小球共振器を用いたマイクロ光配線技術の可能性と将来展望	機能材料	28(11), 52-58 (2008)	②, ③
38	T. Onodera, J. Ujita, D. Ishikawa, A. Masuhara, H. Kasai, H. Oikawa	東北大	Hybridization of Polydiacetylene Core and Metal shell	ECS Transactions	16(33), 1-11 (2009)	②
39	T. Yokoyama, A. Masuhara, T. Onodera, H. Kasai, H. Oikawa	東北大・物材機構・日大	Development of fabrication process for Ag/polydiacetylene (core/shell) hybridized nanocrystals	Synthetic Metals	DOI: 10.1016/j.synthmet.2009.01.058	②
40	T. Onodera, M. Nakamura, Y. Takaya, A. Masuhara, Y. Wakayama, N. Nemoto, H. Oikawa	東北大・日大	Encapsulation of -Conjugated Polymer Nanocrystals and Ordered Array Structure toward Photonic Nanomaterials	Journal of Physical Chemistry, Part C	DOI: 10.1021/jp9013916	②
41	Hendry I. Elim, Bin Cai, Yu Kurata, Okihito Sugihara,	東北大	Refractive index control and Rayleigh scattering properties of transparent TiO2	J. Phys. Chem. B	Accepted for publication	①②③

	Toshikuni Kaino, Tadafumi Adschiri, AL. Chu, Nobuyuki Kambe		nanohybrid polymer			
42	Atsushi Sugie, Tomomi Hatta, Kiyoshi Kanie, Atsushi Muramatsu, Atsunori Mori	東北大	Synthesis of Thiol-capped Gold Nanoparticles with Organometallic Reagents as a New Class of Reducing Agent	Chemistry Letters	38 (6), 562-563 (2009).	②
43	村松淳司, 蟹江澄志, 中谷昌史	東北大	単分散微粒子の液相合成と精密形態制御	粉体技術	1 (1), 28-38 (2009)	①, ②, ③
44	蟹江澄志	東北大	様々なかたちの粒子がもたらす機能	究極のかたちをつくる, 日刊工業新聞社	29-37, 2009	①, ②, ③
45	M. Yoshinaga, H. Takahashi, K. Yamamoto, A. Muramatsu, T. Morikawa	東北大	Formation of metallic Ni nanoparticles on titania surfaces by chemical vapor reductive deposition method	Journal of Colloid and Interface Science	309, 149-154 (2007)	②
46	Salomon E. Borjas Garcia, Katsutoshi Yamamoto, Fumio Saito, Atsushi Muramatsu	東北大	Titanosilicate zeolite synthesized via mechanochemical route: effect of mechanochemical reaction conditions	Journal of the Japan Petroleum Institute	50, 53-60 (2007)	②
47	Kiyoshi Kanie, Hiroshi Sakai, Atsushi Muramatsu, Junji Tani, Hirofumi Takahashi	東北大	Synthesis of Bismuth Sodium Titanate Fine Particles with Different Shapes by the Gel-Sol Method	Materials Transactions	48, 2174-2178 (2007)	②
48	Jin-gang LIU, Yasuhiro NAKAMURA, Yuji SHIBASAKI, Shinji ANDO, and Mitsuru UEDA	東工大	Synthesis and Characterization of High Refractive Index Polyimides Derived from 4,4'-(p-Phenylenedisulfanyl)dianiline and Various Aromatic Tetracarboxylic Dianhydrides	Polym. Journal,	9(6), 543-550 (2007)	②
49	Jin-gang LIU, Yasuhiro NAKAMURA, Yuji SHIBASAKI, Shinji ANDO, Mitsuru UEDA	東工大	High Refractive Index Polyimides Derived from 2,7-Bis(4-aminophenylsulfanyl)thianthrene and Aromatic Dianhydrides	Macromolecules	40(13), 4614-4620 (2007)	②
50	Jin-gang LIU, Yasuhiro NAKAMURA, Yasuo	東工大	Highly Refractive and Transparent Polyimides Derived	Macromolecules	40(22), 7902-7909 (2007).	②

	SUZUKI, Yuji SHIBASAKI, Shinji ANDO, and M. UEDA		from 4,4'-[m-Sulfonylbis(p henylenesulfanyl)]dip hthalic Anhydride and Various Sulfur-Containing Aromatic Diamines			
51	Jin-gang LIU, Yasuhiro NAKAMURA, Yasuo SUZUKI, Yuji SHIBASAKI, Shinji ANDO, and M. UEDA	東工大	Synthesis and Characterization of Highly Refractive Polyimides from 4,4'-Thiobis[(p-pheny lenesulfanyl)aniline] and Various Aromatic Tetracarboxylic Dianhydrides	J. Polym. Sci. Part A, Polym Chem.,	45(23), 5606-561 7 (2007)	②
52	Akiko MATSUMURA, Yoshiharu TERUI, Shinji ANDO, Akira ABE and Tsutomu TAKEICHI	東工大	Effects of Structural Isomerism and Precursor Structures on Thermo-optic Coefficients of BPDA/PDA Polyimide Films	J. Photopolym. Sci. Technol.	20(2), 167-174 (2007)	②
53	Sunan TIPTIPAKORN, Siriporn DAMRONGSAKKUL, Shinji ANDO, Kasinee HEMVICHIAN, Sarawut RIMDUSIT	東工大	Thermal degradation behaviors of polybenzoxazine and silicon-containing polyimide blends	Polym. Degrad. Stab	92(7), 1265-127 8 (2007).	②
54	Jin-gang LIU, Yasuhiro NAKAMURA, Tomohito OGURA, Yuji SHIBASAKI, Shinji ANDO, and Mitsuru UEDA	東工大	Optically Transparent Sulfur-Containing Polyimide-TiO <sub>2</sub> Nanocomposite Films with High Refractive Index and Negative Pattern Formation ffrom Poly(amic acid)-TiO <sub>2</sub> Nanocomposite Film	Chem. Mater.	20(1), 273-281, (2008)	②
55	Yuichi URANO, Ningjuan CHEN, Kaichiro NAKANO, Katsumi MAEDA, Shinj ANDO	東工大	Thermally stable multi-mode polymer optical waveguide fabricated by single-step photo-patterning of fluorinated polyimide/epoxy hybrids	Proc. SPIE	6891, 68910P-8 (2008).	②
56	Sunan TIPTIPAKORN, Parkpoom LORJAI, Shinji ANDO, and Sarawut RIMDUSIT	東工大	Surface Segregation-typed Polyimide Blends between Silicon-containing Polyimide and Polyimides of Varied	Synthesis and Reactivity in Inorganic, Metal-Organic, and Nano-Metal Chemistry	38(3), 248-255 (2008)	②

			Chain Flexibility			
57	Yulai HAN, Junji WAKITA, Shigeki KUROKI, Xiaogong WANG, and Shinji ANDO	東工大	Preparation and Characterization of Polyimide/Fluorinated Silicate Nano-hybrid Thin Films with Low Refractive Indices	J. Photopolym. Sci. Technol.	21(1), 143-150 (2008)	②
58	Anongnat SOMWANGTHANAROJ , Chuthatai PHANTHAWONGE, Shinji ANDO, Wiwut TANTHAPANICHAKO ON	東工大	Effect of the Origin of ZnO Nanoparticles Dispersed in Polyimide Films on Their Photoluminescence and Thermal Stability	J. Appl. Polym. Sci.	110 (4), 1921-192 8 (2008)	②
59	N-H You, Y. Suzuki, T. Higashihara, S. Ando, M. Ueda	東工大	Synthesis and characterization of highly refractive polyimides derived from 2,7-bis(4' -aminophenylenesulfan yl)thianthrene-5,5,10 ,10-tetraoxide and aromatic dianhydrides	Polymer	50, 789-795 (2009)	②
60	N-H You, Y. Suzuki, D. Yorifuji, S. Ando, M. Ueda	東工大	Synthesis of High Refractive Index Polyimides Derived from 1,6-Bis(p-aminophenyl sulfanyl)-3,4,8,9-tet rahydro-2,5,7,10-tetr athiaanthracene and Aromatic Dianhydrides	Macromolecul es	41, 6361 - 6366 (2008)	②
61	藤原幸雄, 近藤貢二, 寺西義一, 渡辺幸次, 野中秀彦, 齋藤直昭, 井藤浩志, 藤本俊幸, 黒河明, 一村信吾, 富田 充裕	産総研	金属クラスター 錯体イオンビー ムの発生とその 応用	Journal of the Vacuum Society of Japan	Vol.52 No.4 p231-236	④
62	Kwang-Ryul Kim, Jae-Hoon Kim, Kwang-Ho Kim, Koichi Niihara and Young-Keun Jeong	長岡技 大	Laser microfabrication of alumina-silicon carbide nanocomposites	Journal of Ceramic Processing Research	Vol.9, No.4, 421-424 (2008)	③
63	Takafumi Kusunose, Tohru Sekino, Yoichi Ando, and Koichi Niihara	長岡技 大	Fabrication of machinable AlN-BN composites with high thermal conductivity by pressureless sintering turbostatic BN-coated AlN nanocomposite powders	J. Mater. Res.	vol.23, No.1, Jan (2008)	③
64	Takayuki Kamekawa, Hiroki Asami,	長岡技 大	(Ni, Cu)O Phase in Thin Films Prepared by Pulsed Laser Deposition	Jpn. J. Appl. Phys.,	47, 584-587 (2008).	③



	tsuneo Suzuki, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Takashi Yunogami, and Koichi Niihara					
65	Keiichi Murai, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang, Kiyoshi yatsui, and Koichi Niihara	長岡技 大	Determination of Submicrometer particle Content in Copper Powder Prepared by Pulsed Wire Discharge	Jpn. J. Appl. Phys	47, 605-608(2 008).	③
66	Takahiro Suzuki, Tadachika Nakayama, Tsuneo Suzuki, Hisayuki Suematsu, and Koichi Niihara	長岡技 大	Change in Electrical Resistivity of NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> Porous Bulks Caused by Adsorption and Desorption of Alcohols	Jpn. J. Appl. Phys	47, 661-663 (2008).	③
67	Yoshinori Tokoi, Tsuneo Suzuki, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang, and Koichi Niihara	長岡技 大	Synthesis of Nanosized Powder by Pulsed Wire Discharge	Jpn. J. Appl. Phys	47, 760-763 (2008).	③
68	Koji Suwa, Tadachika Nakayama, Tsuneo Suzuki, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang, and Koichi Niihara	長岡技 大	Synthesis of Ni-Cu Nanoparticles by Pulsed Wire Discharge and their Compositional Distribution	Jpn. J. Appl. Phys	47, 775-779 (2008).	③
69	Yoshinori Tokoi, Tsuneo Suzuki, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang and Koichi Niihara	長岡技 大	Effect of Wire Diameter on Particle Size of Metal Nanosized Powder Prepared by Pulsed Wire Discharge	J. Jpn. Soc. Powder Poeder Metallurgy	55,192-197 (2008).	③
70	Hiroshi OHNISHI, Hironori NAKA, Tohru SEKINO, Yuichi IKUHARA and Koichi NIIHARA	長岡技 大	Mechanical properties of Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -stabilized ZrO <sub>2</sub> polycrystals fabricated by the solid phase mixing and sintering method	Journal of the Ceramic Society of Japan	Vol.116 [3] 491-496 (2008)	③
71	Keiichi Murai, Yoshinori Tokoi, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang, Kiyoshi Yatsui, and Koichi Niihara	長岡技 大	Particle Size Controllability of Ambient Gas Species for Copper Nanoparticles Prepared by Pulsed Wire Discharge	Jpn. J. Appl. Phys.	Vol.47, No.54, 3726-373 0 (2008).	③

72	Kazuhiro Kanda, Jun-ya Igaki, Akihiko Saikubo, Reo Kometani, Tsuneo Suzuki, Koichi Niihara, Hidetoshi Saitoh, and Shinji Matsui	長岡技 大	Effects of Annealing on Material Characteristics of Diamond-Like Carbon Film Formed by Focused-Ion-Beam Chemical Vapor Deposition	Jpn. J. Appl. Phys.	Vol.47, [9], 7464-746 6 (2008).	③
73	Pawel Dluzewski, Marcin Mazdziarz, Grzegorz Jurczak, Piotr Traczykowski, Koichi Niihara, Roman Nowak, Krzysztof Kurzydowski	長岡技 大	A hybrid atomistic-continuum finite element modeling of nanoindentation and experimental verification for copper crystal	Computer Assisted Mechanics and Engineering Sciences	15: 37-44 (2008)	③
74	Hiroshi OHNISHI, Hironori NAKA, Tohru SEKINO, Yuichi IKUHARA and Koichi NIIHARA	長岡技 大	Mechanical properties of 2.0-3.5 mol% Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -stabilized zirconia polycrystals fabricated by the solid phase mixing and sintering method	Journal of the Ceramic Society of Japan	116 [12] 1270-127 7 (2008)	③
75	Kwang-Ryul Kim, Jae-Hoon Kim, Kwang-Ho Kim, Koichi Niihara and Young-Keun Jeong	長岡技 大	Laser microfabrication of alumina-silicon carbide nanocomposites	Journal of Ceramic Processing Research	Vol.9, No.4, 421-424 (2008).	③

○三菱化学（株）

No. (関係 箇所)	発表日	著者	所属	題名	雑誌等の名 称	巻・号・ ページ	査読
1 (3.2.1)	2009	K. Suganuma, et al.	大阪大 学	Preparation of Ag nanorods with high yield by polyol process	Materials Chemistry and Physics	114, 333-338 (2009)	有り
2 (3.2.1)	予定) 2009/9	T. Kusunose	大阪大 学	Synthesis and thermal conductivity of $\beta$ -Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub> nanowire			有り
3 (3.2.3)	予定)	平野寛、 長谷川喜 一、上利 泰幸	大阪市 工研	未定	ネットワー クポリマー		有り
4	予定)	H. Hirano,	大阪市	未定	J. Polym. Sci		

(3.2.3)		K. Hasegawa, Y. Agari	工研				
5 (3.2.3)	予定)	H. Hirano, K. Hasegawa, Y. Agari	大阪市 工研	未定	Chem. Mater.		

○東レ・ダウコーニング（株）

No	発表日	著者	所属	題名	雑誌等の名称	巻・号・ページ	査読
1	2009.3	Ogawa, Furudate, Oshima	Dow Corning Toray and the Univ. Tokyo	Supercritical hydrothermal synthesis of silicon-functional metal and metal oxide nanoparticles	<i>Eur. J. Inorg. Chem.</i>	2009, 1619	Yes

4. 口頭発表リスト

○（財）化学技術戦略推進機構、（独）産業総合研究所、東北大学、東京工業大学、長岡技術科学大学、九州大学

No	発表日	著者	所属	題名	学会等の名称	巻・号・ページ	対応研究開発項目
1	2008/9/24	有田 稔彦・守屋 謙一・南公隆・名嘉節・阿尻 雅文	東北大	高分子修飾ハイブリッドチタニアナノ粒子の創製	化学工学会	第40回秋季大会	① ②
2	2008/9/24	北條 大介・田口 実・南公隆・有田 稔彦・高見 誠一・阿尻 雅文	東北大	ナノ粒子配列化のための基板表面制御	化学工学会	第40回秋季大会	① ② ③
3	2008/9/25	南 公隆・石川 貴啓・有田 稔	東北大	有機-無機ハイブリッドナノ粒子合	化学工学会	第40回秋季大会	② ③

		彦・北條 大 介・高見 誠 一・名嘉 節・ 阿尻 雅文		成メカニズムに関 する研究			
4	2008/9 /24	Yoo Jungwoo・ Ueda You・ Arita Toshihiko・ Minami Kimitaka・ Hojo Daisuke・ Takami Seiichi・Naka Takashi・ Adschiri Tadafumi	東北 大	Phase equilibrium of organic modified ceria nanoparticle-solv ent system	化学工 学会	第40回秋季 大会	② ③
5	2008/6 /29 ～ 2008/7 /4	Kiyoshi Kanie, Shun Hatayama, Junji Sekiguchi, Masaki Matsubara, Atsushi Muramatsu	東北 大	Organic-Inorg anic Hybrid Liquid Crystals: Innovation towards “Suprahybrid Material”		22nd Internation al Liquid Crystal Conference,	① ② ③
6	2008/9 /17	尾形雄一郎，蟹 江 澄志，山本 祐治，海田由里 子，桜井宏巳， 村松淳司，杉本 忠夫	東北 大	有機無機ハイブリ ッド液晶の光学材 料への展開	日本液 晶学会	2008年 日本液晶学 会討論会	① ② ③
7	2008/9 /7	松原正樹，蟹江 澄志，中村 浩，村松淳司	東北 大	表面カルボキシル 基修飾単分散球状 金ナノ粒子の合成 と有機デンドロン との複合化による 有機無機ハイブリ ッド液晶の開発		第61回コ ロイドおよ び界面化学 討論会	① ② ③

8	2008/9/7	蟹江澄志, 尾形雄一郎, 海田由里子, 桜井 宏巳, 君島健之, 遠藤光彦, 杉本忠夫, 村松淳司	東北大	チタニア系有機無機ハイブリッド液晶の電気光学材料への応用		第61回コロイドおよび界面化学討論会	②
9	22-25, Oct. 2008	Shinji ANDO	東京工大	“Organic/Inorganic-Polyimide Nanohybrid Materials for Advanced Optical Applications” (invited)		8 <sup>th</sup> China-Japan Seminar on Polyimides and Aromatic Polymers	②
10	2008/7/16-18	安藤 慎治	東京工大	ポリイミド系ナノハイブリッド材料の展開	高分子学会	第54回高分子夏季大学	① ②
11	2008/7/11	安藤 慎治	東京工大	光・電子機能を有するポリイミド系・有機/無機ナノハイブリッド材料の開発	高分子学会	第2回ナノ空間プロジェクト研究会 他 20報	② ③
12	2008/7/9-11	Shinji ANDO	東京工大	Organic/Inorganic-Polyimide Nano-Hybrids with High / Low Refractive Indices for Optical Applications	高分子学会		②
13	2008/6/	Daisuke YORIFUJI, Shinji ANDO and ToshimasaHASHIMOTO	東京工大	Relation between Molecular Structures and Thermal Diffusivities in Polyimide Thin Films		TokyoTech-National Taiwan Univ. Conf 他 8 報	②
14	2008/5/28	倉田優生, 杉原興浩, 戒能俊	東北大	無機酸化物ナノ粒子分散ハイブリッド	高分子学会	第57回高分子学会年次	②

		邦, 小松京嗣, 神部信幸		ド高分子の光学特 性		大会	
15	2008/9 /25	倉田優生, 杉原 興浩, 戒能俊 邦, 小松京嗣, 神部信幸	東北 大	無機酸化物ナノ粒 子分散ハイブリッ ド高分子の光学特 性 (2)	高分子 学会	第57回高分 子討論会	②
16	2009/0 1/08	金子賢治	九州 大	電子線トモグラフ ィによる様々な材 料の解析	日本顕 微鏡学 会	Proceedings 日本顕微鏡 学会・生体 構造解析分 科会	④
17	2009/0 3/07	金子賢治	九州 大	電子線トモグラフ ィによる様々な結 晶性材料の解析	日本顕 微鏡学 会	Proceedings 日本顕微鏡 学会関東支 部会	④
18	2009/0 2/02	Kenji Kaneko	九州 大	Characterization of various crystalline materials by three-dimensional electron tomography	日本顕 微鏡学 会	Proceedings Asia-Pacif ic Congress onElectronT omography,	④
19	2008/1 1/06	K. Kaneko	九州 大	Three-dimensional nano characterization of catalytic materials by TEM		Proceedings 9thAsia-Pac ific MicroscopyC onference,	④
20	2008/0 9/17	金子賢治、北脇 高太郎、張静、 大原智、阿尻雅 文、アンナ・ハ ンガリア、ポー ル・ミッジレー	九州 大	3次元電子線トモ グラフィ法による 触媒ナノ粒子の微 細構造評価	日本セ ラミッ クス協 会	Proceedings 日本セラミ ックス協会	④
21	2008/0 9/10	金子賢治	九州 大	透過型電子顕微鏡 で3次元を観る	日本分 析化学 会,	Proceedings 日本分析化 学会	④
22	2008/0 6/29	K. Kaneko, K. Furu ya, K. Kitawaki, T. On	東北 大	Nanostructural characterization of Pt		Proceedings The1st Internation	④

		odera, H. Kasai, H. Oikawa, Y. Nomura, T. Ishihara, A. B. Hungria, J. -C. Hernandez-Garrido, P. A. Midgley		nanoparticles on phthalocyanine,		al Symposium on Advanced Microscopy and Theoretical Calculations,	
23	(2007. 11)	T. Adschiri	東北大	Supercritical Water of Hybrid Nano Materials	SUPERGREEN		② ③
24	(2008. 2)	Kimitaka MINAMI, Toshihiko ARITA, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北大	Synthesis of Hydrophilic Organic-Inorganic Hybrid Nanoparticle by Supercritical Hydrothermal Method		同上	① ③
25	(2007)	T. Kaino	東北大	Fabrication of very high refractive index polymers for optical device applications		8th Chitose Int'l Forum (CIF'8)	②
26	(2007. 11)	Yu Ueda, Toshihiko Arita, Kimitaka Minami, Jing Zhang, Takashi Naka, Tadafumi Adschiri	東北大	A Phase Behavior of Binary System consisted of Solvent and Organic Surface modified Ceria Nanoparticles Synthesized by Supercritical Hydrothermal Method		SUPERGREEN2 007	① ② ③
27	(2007. 11)	Kimitaka MINAMI,	東北大	Control of Hydrophilicity		1st Internation	① ②

		Toshihiko ARITA, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI		and Hydrophobicity on Organic-Inorganic Hybrid Nanoparticle Synthesize by Supercritical Hydrothermal Method		al Symposium on Aqua Science, Water Resource and Innovation Development of Countryside	③
28	(2008. 2)	Makie MIZUNO, Minori TAGUCHI, Toshihiko ARITA, Kimitaka MINAMI, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北 大	Synthesis of Metal Sulfide Nano- particles in Supercritical Fluid		2nd Internation al Symposium on Applicatio ns of Supercritic al Fluids in Green Chemistry and Material Science	① ② ③
29	(2008. 2)	Takahiro ISHIKAWA, Toshihiko ARITA, Kimitaka MINAMI, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北 大	Mechanism of Supercritical Hydrothermal Synthesis of Organic-Inorganic Hybrid Nanoparticles		同上	① ② ③
30	(2008. 2)	Ken-ichi MORIYA, Toshihiko ARITA, Kimitaka MINAMI, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北 大	Synthesis of TiO <sub>2</sub> /PMMA Nanohybrid		同上	② ③



31	(2008. 2)	Hidetsugu HITAKA, Hong LI, Toshihiko ARITA, Kimitaka MINAMI, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北 大	Supercritical Hydrothermal Synthesis of Metal Nanoparticles		同上	②③
32	(2008. 2)	Yu UEDA, Toshihiko ARITA, Kimitaka MINAMI, Jing ZHANG, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北 大	A Phase Equilibrium of a CeO <sub>2</sub> Hybrid Nanoparticles-Sol vent Binary System		同上	② ③
33	(2008. 2)	Takanari TOGASHI, Mitsuo UMETSU, Kimitaka MINAMI, Toshihiko ARITA, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北 大	Synthesis of Bio-Inorganic Hybridmaterials through direct Assembly of Metal Oxide Nano Particle on Cyclic dipeptide Nanowire under Hydrothermal Condition		同上	② ③
34	(2008. 2)	Takafumi SASAKI, Toshihiko ARITA, Kimitaka MINAMI, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI	東北 大	Supercritical Hydrothermal Synthesis of Organic-Inorganic Hybrid Gd(OH) <sub>3</sub> Nanoparticles		同上	② ③
35	(2008. 2)	Masafumi SAITO, Takafumi SASAKI, Kimitaka MINAMI, Toshihiko	東北 大	Supercritical Hydrothermal Synthesis of Garnet Nanoparticle		同上	② ③

		ARITA, Takashi NAKA, Tadafumi ADSCHIRI					
36	(2007. 11)	Kiyoshi Kanie, Shun Hatayama, Hiroshi Nakamura, Atsushi Muramatsu	東北 大	Organic-Inorganic Hybrid Liquid Crystals: Induction of Thermotropic Liquid-Crystallin ity into Disk-Shaped Iron Oxide Magnetic Nanoparticles	MRS	2007 Materials Research Society Fall Meeting	① ②
37	18 - 20, October, 2006	Takashi Minagawa, X.P. Zhu, Tuneo Suzuki, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang and Koichi Niihara	長岡 岐大	Fabrication of the Nanoparticles by the Underwater Laser Ablation Method		The 2nd Asia-Ocean ia Ceramic Federation Conference	③
38	19 - 22, June, 2007	Takashi Minagawa, Koji Suwa, Tadachika Nakayama, Tuneo Suzuki, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang and Koichi Niihara	長岡 岐大	Fabrication of silver nanostructures by an underwater laser ablation method		Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnol ogie	③
39	(2007. 11.21- .23)	名嘉 節, 張 静, 阿尻 雅文	東北 大	超臨界水熱場を用 いたセリアナノ粒 子の合成と価数転 移	化学工 学	第48回高圧 討論会, 倉 吉市会	②
40	(2007.	阿尻 雅文	東北	超臨界法による超	化学工	最近の化学	②

	12)		大	粒子創製	学	工学58講習会	③
41	(2007.9.12-14)	蟹江澄志, 中村浩, 松原正樹, 村松淳司	東北大	有機無機ハイブリッド液晶: 単分散球状金ナノ粒子と有機デンドロンとの複合化		2007年日本液晶学会討論会	① ②
42	(2007.9.12-14)	蟹江澄志, 畑山峻, 中村浩, 村松淳司	東北大	有機無機ハイブリッド液晶: 盤状磁性酸化鉄ナノ粒子の液晶化		同上	① ②
43	(2007.9.20-22)	関口準二, 蟹江澄志, 村松淳司	東北大	リン脂質部位を有する棒状液晶の合成と物性		第60回コロイドおよび界面化学討論会	②
44	(2007.9.20-22)	畑山峻, 蟹江澄志, 村松淳司, 中村浩	東北大	有機無機ハイブリッド液晶: ディスク状磁性酸化鉄ナノ粒子の液晶化		同上	① ②
45	(2007.9.20-22)	松原正樹, 蟹江澄志, 村松淳司, 中村浩	東北大	有機無機ハイブリッド液晶: 単分散球状金ナノ粒子とアミノ基を有する液晶性デンドロンとの複合化		同上	① ②
46	(2008.3.26-30)	松原正樹, 蟹江澄志, 村松淳司, 中村浩	東北大	表面カルボキシル基修飾単分散球状金ナノ粒子の合成と有機デンドロンとの複合化による有機無機ハイブリッド液晶化	日本化学会	日本化学会第88春季年会	① ②
47	(2008.3.26-30)	関口準二, 蟹江澄志, 村松淳司	東北大	リン脂質部位を有する棒状液晶の合成と液晶相構造評価	同上	同上	②
48	(2007)	金泰昊, 小松京嗣, 杉原興浩, 戒能俊邦, 工藤	東北大	カリックスアレーン重合体の光学特性		第56回高分子討論会	②

		宏人、西久保忠臣					
49	(2007)	倉田優生、徳武昌道、小松京嗣、杉原興浩、戒能俊邦、神部信幸	東北大	二酸化チタンナノ粒子分散高屈折率ハイブリッド高分子の透明性と耐久性		同上	① ②
50	2007 9 4 - 8	皆川 敬、 諏訪浩司、 中山忠親、 鈴木常生、 末松久幸、 新原皓一	長岡岐大	超音波化学反応と光照射を用いた異方性銀ナノ材料の合成		第68回応用物理学会学術講演会	③
51	2007/9 /12-14	皆川 敬、 朱小鵬、 中山忠親、 鈴木常生、 末松久幸、 江 偉華、 新原皓一	長岡岐大	溶液中での極限状態を利用した異方性銀ナノ材料の合成		日本セラミックス協会第20回秋季シンポジウム	③
52	2008/3 /20-22	皆川 敬、 中山忠親、 鈴木常生、 末松久幸、 新原皓一	長岡岐大	超音波と光の協奏作用による銀ナノシート / 粒子複合材料の合成		日本セラミックス協会2008年年会	③
53	(2007. 10. 10)	金子 賢治	九州大	ナノ粒子の三次元構造評価の新展開		粉体プロセス研究会, 大阪大学接合研	④
54	(2007. 11. 15)	藤原 幸雄 他	産総研	大質量分子を用いた溶液型クラスター負イオンビーム源の開発		第48回真空に関する連合講演会, 学習院大	④
55	(2007. 12. 1)	北脇 高太郎, 金子 賢治, 堀田 善治, Zhang Jing, 大原 智, 阿尻雅文	九州大	水熱合成法で得られた CeO <sub>2</sub> ナノ粒子の微構造解析		日本顕微鏡学会九州支部会	④
56	2008. 5 . 28	依藤大輔・安藤慎治・橋本寿正	東工大	ポリイミド薄膜における分子構造・高次構造と熱拡散	高分子学会予稿集	57(1), 785 (2008)	② ③

				率の関係			
57	2008.9 .25	依藤大輔・安藤 慎治	東工 大	高分子ブレンドを 用いた選択的銀ナ ノ粒子析出による 熱伝導パスの形成	高分子 学会予 稿集	57(2), 3502-3503 (2008)	② ③
58	2008/9 /8	Tadafumi Adschiri	東北 大	Towards A New phase of chemical reaction engineering		The 20th ISCRE 2008 (Internatio nal Symposiu m on Chemical Reaction Engineerin g)	③
59	2009/1 /12	Tadafumi Adschiri	東北 大	Role of Water on reactions under supercritical condition -hydrocarbon, biomass, organic-inorganic materials-		2009 GRC (Hydrocarb on Resources Goron Research Conference )	② ③
60	2009/3 /10	Tadafumi Adschiri	東北 大	Green 材料合成反 応場としての超臨 界水		第9回 GSC シンポジウ ム	② ③
61	2009/5 /13	Tadafumi Adschiri	東北 大	Supercritical Hydrothermal Synthesis of Organic-Inorganic Hybrid Nanoparticles		ACHEMA2009	① ② ③
62	2007/9 /4-8	高谷洋輔, 小野 寺恒信, 三井 正, 若山裕, 及 川英俊	東北 大・ 物材 機構	カプセル化 CdS 微 粒子の作製	応用物 理学会	第68回応 用物理学会 学術講演会	②
63	2007/1 1/15- 16	高谷洋輔, 小野 寺恒信, 三井 正, 若山裕, 及 川英俊	東北 大・ 物材 機構	パターン基板上で の配列制御を目指 した CdS 微粒子の 高分子カプセル化	高分子 学会東 北支部	2007 高分子 学会東北支 部研究発表 会	②
64	2007/1 1/15- 16	横山喬大, 増原 陽人, 笠井均, 及川英俊	東北 大	ポリジアセチレン -金属コア-シェ ル構造作製法の開 発	高分子 学会東 北支部	2007 高分子 学会東北支 部研究発表 会	②
65	2008/3 /27	古屋和基, 金子 賢治, 野村要 平, 石原達己, 矢口雄介, 小野 寺恒信, 及川英 俊, 笠井均	九州 大・ 東北 大	ハイブリッド系有 機-金属ナノ結晶 の微細構造解析	日本金 属学会	日本金属学 会2008年春 季大会	②, ④
66	2008/9 /3	松田佳久, 増原 陽人, 横山喬 大, 小野寺恒 信, 笠井均, 及川 英俊	東北 大	金-ポリジアセチ レンハイブリッド ナノ構造体の作製 と評価	応用物 理学会	第69回応 用物理学会 学術講演会	②
67	2008/9	中村美佳, 小野 寺恒信, 増原陽	東北 大・	ポリジアセチレン ナノ結晶をコアと	日本化 学会	第61回コロ イドおよび	②

	/8	人, 笠井均, 根本修克, 及川英俊	日大	した高分子によるカプセル化		界面化学討論会	
68	2008/9/24	小野寺恒信, 増原陽人, 笠井均, 及川英俊	東北大	$\pi$ -共役高分子ナノコア/金属ナノシェル複合体の作製制御	高分子学会	第57回高分子討論会	②
69	2008/9/24	横山喬大, 増原陽人, 小野寺恒信, 笠井均, 及川英俊	東北大	ポリジアセチレンと金属から成る新規ハイブリッドナノ構造体の構築	高分子学会	第57回高分子討論会	②
70	2008/1/13	中村美佳, 小野寺恒信, 増原陽人, 笠井均, 根本修克, 及川英俊	東北大・日大	ポリスチレンによるPDA ナノ結晶コアのカプセル化	高分子学会東北支部	2008 高分子学会東北支部研究発表会	②
71	2008/1/13	石川大佑, 小野寺恒信, 増原陽人, 笠井均, 及川英俊	東北大	光触媒還元法を用いた共役高分子-金属ナノ複合材料の高次構造制御	高分子学会東北支部	2008 高分子学会東北支部研究発表会	②
72	2008/1/13	松田佳久, 増原陽人, 横山喬大, 小野寺恒信, 笠井均, 及川英俊	東北大	金(コア)- $\pi$ 共役高分子(シェル)ハイブリッドナノ構造体の作製と評価	高分子学会東北支部	2008 高分子学会東北支部研究発表会	②
73	2009/5/13	Atsushi Muramatsu, Kiyoshi Kanie	東北大	Hybrid nanomaterial by combination of monodispersed oxide nanoparticles with organic liquid crystals		ACHEMA2009	①, ②, ③
74	2007/11	Kiyoshi Kanie, Hiroshi Sakai, Yoshiki Numamoto, Junji Tani, Hirofumi Takahashi, Atsushi Muramatsu	東北大	Synthesis of Bismuth Sodium Titanate Fine Particles with Different Shapes by the Gel-Sol Method		The 24th International Japan-Korea Seminar on Ceramics	②
75	2008.6.29-7.4	Kiyoshi Kanie, Shun Hatayama, Junji Sekiguchi, Masaki Matsubara, Atsushi Muramatsu	東北大	Organic-Inorganic Hybrid Liquid Crystals: Innovation towards "Suprahybrid Material"		22nd International Liquid Crystal Conference, Korea	②, ③
76	2008.7.13-2008.7.18	Kiyoshi Kanie, Davaasuren Bambar, Jhon Cuya, Hideyuki Takahashi, Katsutoshi Yamamoto, Nobuaki Sato,	東北大	Preparation of TiO <sub>2</sub> , BaTiO <sub>3</sub> , and SrTiO <sub>3</sub> nanoparticles by the Gel-Sol method and the dope of sulfur		The 14th International Congress on Catalysis	②

		Atsushi Muramatsu					
77	2009.3.15-3.19	Kiyoshi Kanie, Masaki Matsubara, Atsushi Muramatsu, Hiroshi Nakamura, Goran Ungar	東北大	Organic-Inorganic Hybrid Cubic Liquid Crystals: Hybridization of Amino-Substituted Dendrons with Surface-Modified Monodisperse Gold Nanoparticles		First International Conference on Multifunctional, Hybrid and Nanomaterials	②, ③
78	2009.3.27-2008.3.30	制野友樹, 蟹江澄志, 中谷昌史, 村松淳司	東北大	サーモトロピック液晶部位を有する4級アンモニウム塩: シリカ合成におけるテンプレートとしての効果		第89回日本化学会春季年会	②
79	2009.3.27-2008.3.30	沼本芳樹, 蟹江澄志, 村松淳司, 谷順二, 高橋弘文	東北大	チタン酸ビスマスマトリウム微粒子の水熱合成と圧電特性		第89回日本化学会春季年会	②
80	2009.3.27-2008.3.30	蟹江澄志, 関口準二, ZENG Xiangbing, UNGAR Goran, 村松淳司	東北大	リン脂質部位を有する棒状液晶: アクティブメンブレンの創製に向けて		第89回日本化学会春季年会	②
81	2009.3.27-2008.3.30	柳橋宣利, 中谷昌史, 蟹江澄志, 村松淳司	東北大	液相還元法によるアルミナ担持銅-亜鉛ナノ粒子の合成		第89回日本化学会春季年会	②
82	2009.3.27-2008.3.30	遠藤光彦, 吉永勝己, 中谷昌史, 蟹江澄志, 村松淳司	東北大	形状制御されたニッケル粒子担持酸化チタン微粒子の合成と形状の違いが及ぼす光触媒活性への影響		第89回日本化学会春季年会	②
83	2009.3.27-2008.3.30	松原正樹, 蟹江澄志, 村松淳司, 中村浩, Xiangbing Zeng, Goran Ungar	東北大	表面カルボキシル基修飾金ナノ粒子と有機 dendron の複合化による液晶性有機無機ハイブリッド超格子の開発とその組織構造評価		第89回日本化学会春季年会	②
84	2009.3.27-2008.3.30	君島健之, 蟹江澄志, RAINY CHOWDHURY, 村松淳司	東北大	有機無機ハイブリッドナノロッド: 有機液晶修飾酸化チタンナノ粒子の In-situ 合成		第89回日本化学会春季年会	②
85	2009.3	山中武, 杉江敦司, 八田知	東北大	有機溶媒に可溶な金チオラートを用		第89回日本化学会春	②

	. 27-20 08. 3. 30	勇, 森 敦紀, 蟹江澄志, 村松 淳司		いた球状金ナノ粒 子の合成		季年会	
86	2009. 3 . 27-20 08. 3. 30	杉江敦司, 染手 隆志, 森 敦 紀, 松原正樹, 蟹江澄志, 村松 淳司	東北 大	有機溶媒系でおこ なう新規な球状金 ナノ粒子の合成		第 8 9 回日 本化学会春 季年会	②
87	2009. 1 0. 11-1 0. 14	Kiyoshi Kanie, Junji Sekiguchi, Atsushi Muramatsu, Xiangbing Zeng, and Goran Ungar	東北 大	Synthesis and the Lyotropic Liquid-Crystallin e Behavior of Calamitic Liquid Crystals with a Coline Phosphate Moiety		The 3rd Asian Conference on Colloid and Interface Science	②
88	2009. 1 0. 11-1 0. 14	Masaki Matsubara, Kiyoshi Kanie, Atsushi Muramatsu, Hiroshi Nakamura, Xiangbing Zeng, Feng Liu, and Goran Ungar	東北 大	Organic-Inorganic Hybrid Liquid Crystals: Hybridization of CO <sub>2</sub> H-Substituted Spherical Monodispersed Gold Nanoparticles with Organic Liquid-crystallin e Dendrons with an Amino-Group		The 3rd Asian Conference on Colloid and Interface Science	②
89	2007. 9 . 20-20 07. 9. 22	沼本芳樹, 酒井 洋, 蟹江澄志, 村松淳司, 谷 順二, 高橋弘文	東北 大	ゲルゾル法によ るチタン酸ビスマ スナトリウム微粒 子の合成と形態制 御		第 6 0 回コ ロイドおよ び界面化学 討論会	②
90	2008. 3 . 26-20 08. 3. 30	沼本芳樹, 酒井 洋, 蟹江澄志, 谷 順二, 高橋 弘文, 村松淳司	東北 大	ゲルゾル法によ るニオブ酸ナトリ ウムおよびニオブ 酸カリウム微粒 子の合成		第88日本化 学会春季年 会	②
91	2008. 3 . 26-20 08. 3. 30	杉江敦司, 染手 隆志, 森 敦 紀, 蟹江澄志, 村松淳司	東北 大	シラン系還元剤を 用いた有機溶媒系 における単分散球 状金ナノ粒子の合 成		第88日本化 学会春季年 会	②
92	2008. 3 . 28-20 08. 3. 29	蟹江澄志, Davaasuren Bambar, Jhon Cuya, 高橋英 志, 佐藤修彰, 村松淳司	東北 大	ゲルゾル法によ る BaTiO <sub>3</sub> およ び SrTiO <sub>3</sub> ナノ粒 子の合成と部分硫 化による新規光触 媒材料の開発		第 1 0 1 会 触媒学会討 論会	②
93	2008. 7 . 28	関口準二, 蟹江 澄志, 村松淳司		リン脂質部位を持 つ棒状液晶の合成 および相転移挙動		ハイブリッ ドナノマテ リアル・シ	②



				の解析		ンポジウム	
94	2008.7 .28	松原正樹, 蟹江澄志, 中村浩, 村松淳司		表面カルボキシル基修飾単分散球状金ナノ粒子の合成と有機デンドロンとの複合化による有機無機ハイブリッド液晶の開発		ハイブリッドナノマテリアル・シンポジウム	②
95	2008.9 .7-2008.9.9	関口準二, 蟹江澄志, 村松淳司		リン脂質部位を持つ棒状液晶の相転移挙動および相構造評価		第61回コロイドおよび界面化学討論会	②
96	2008.9 .7-2008.9.9	沼本芳樹, 蟹江澄志, 村松淳司, 谷順二, 高橋弘文		水熱合成法によるチタン酸ビスマスナトリウム微粒子の合成		第61回コロイドおよび界面化学討論会	②
97	2008.9 .17-2008.9.19	蟹江澄志, 関口準二, 村松淳司		リン脂質部位を有する棒状液晶の合成と相構造評価		2008年日本液晶学会討論会	②
98	2008.9 .23-2008.9.26	遠藤光彦, 吉永勝己, 蟹江澄志, 中谷昌史, 村松淳司		ゲル-ゾル法・液相還元選択析出法調製 Ni/TiO <sub>2</sub> 触媒の光触媒活性に与えるチタニア形状効果		第102回触媒討論会	②
99	2008.1 2.11	松原正樹, 蟹江澄志, 村松淳司, 中村浩, Xiangbing Zeng, Goran Ungar		表面カルボキシル基修飾金ナノ粒子と有機デンドロンの複合化による液晶性有機無機ハイブリッド超格子の開発		第8回東北大学多元物質科学研究所研究発表会	②
100	2009.3 .27-2009.3.30	沼本芳樹, 蟹江澄志, 村松淳司, 谷順二, 高橋弘文		チタン酸ビスマスナトリウム微粒子の水熱合成と圧電特性		第89日本化学会春季年会	②
101	2007.1 1.15	藤原幸雄他	産総研	大質量分子を用いた溶液型クラスター負イオンビーム源の開発	第48回真空に関する連合講演会		④
102	2008.0 9.10	金子賢治	九大	透過型電子顕微鏡で3次元を観る	日本分析化学会		④
103	2008.0 9.17	金子賢治, 北脇高太郎, 張静, 大原智, 阿尻雅文, アンナ・ハンガリア, ポール・ミッジレー	九大他	3次元電子線トモグラフィ法による触媒ナノ粒子の微細構造評価	日本セラミックス協会		④
104	2008.1	鈴木良一	産総研	陽電子ビームを用いた極微空孔評価	エンジニアリ		④

	0.31			とハイブリッド材料開発への応用	ングプラスチック部材の最新動向と研究開発の状況ー無機材料との融合化ーワークショップ		
105	2008.1 1.14	千葉亮、林繁信	産総研	31P CP MAS NMR によるナノ粒子表面の修飾有機分子の結合状態	第47回 NMR 討論会		④
106	2008.1 2.19	金子賢治	九大	3次元電子線トモグラフィ法の応用例	日本顕微鏡学会・デバイス分科会		④
107	2009.0 1.08	金子賢治	九大	電子線トモグラフィによる様々な材料の解析	日本顕微鏡学会・生体構造解析分科会		④
108	2009.0 1.22	千葉亮、林繁信	産総研	31P CP MAS NMR (交差分極/マジックアングルスピンニング核磁気共鳴) によるナノ粒子表面の修飾有機分子の結合状態	計測フロンティア研究部門第5回シンポジウム		④
109	2009.0 3.07	金子賢治	九大	電子線トモグラフィによる様々な結晶性材料の解析	, 日本顕微鏡学会関東支部会		④
110	2009.3 .12	藤原幸雄他	産総研	Ion beam generation from an electrolyte solution containing polyatomic ions for Secondary Ion Mass Spectrometry	第9回クラスターイオンビームテクノロジーワークショップ		④
111	2009.0 3.30	千葉亮、林繁信		31P CP MAS NMR によるアルキルホスホン酸と酸化物ナノ粒子の複合試料におけるリン酸基の結合状態	日本化学会第89春季年会		④
112	2009.0	Y. Fujiwara, N. Sa	産総	Time-of-Flight	17th		④

	9. 14	ito, H. Nonaka, A. Suzuki, T. Nakana ga, T. Fujimoto, A . Kurokawa and S. Ichimura	研	Secondary Ion Mass spectrometry (TOF-SIMS) using the metal-cluster-complex primary ion of Ir <sub>4</sub> (CO) <sub>7</sub> <sup>+</sup>	International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry 2009		
113	2008. 2 . 25	Tadachika Nakayama	長岡技大	Fabrication of the anisotropic nanostructured Ag materials with Laser Ablation Method in Water		The 17 <sup>th</sup> JSPS-KOSEF Core University program (CUP) Seminar between Japan and Korea	③
114	2008. 3 . 21	床井良徳、鈴木常生、中山忠親	長岡技大	パルス細線放電法を用いた窒素雰囲気中での AlN 超微粒子の作製		日本セラミックス協会 2008 年年会	③
115	2008. 3 . 21	中山忠親	長岡技大	含水チタニアナノチューブ /Pd 複合材料における熱重量特性		日本セラミックス協会 2008 年年会講演	③
116	2008. 3 . 21	鈴木崇弘、中山忠親	長岡技大	有機物塗布した NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ナノポアスポンジの電気抵抗率における傾き急変温度と沸点の相関		日本セラミックス協会 2008 年年会講演	③
117	2008. 3 . 21	皆川 敬、中山忠親	長岡技大	超音波と光の協奏作用による銀ナノシート / 粒子複合材料の合成		日本セラミックス協会 2008 年年会講演	③
118	2008. 3 . 21	大堀鉄太郎、浅見廣樹、鈴木常生、中山忠親	長岡技大	RFマグネトロンスパッタ法による立方晶窒化ホウ素薄膜の形成		日本セラミックス協会 2008 年年会講演	③
119	2008. 3 . 21	浅見廣樹、大堀鉄太郎、鈴木常生、中山忠親、末松久幸、新原皓一	長岡技大	第二金属元素 M (Ni, Cu, Mg) の添加による Cr(N, O) 薄膜の機械的特性改善		日本セラミックス協会 2008 年年会講演	③
120	2008. 3 . 21	鈴木俊太郎、鈴木常生、コンスタンティン グレゴリユー、中	長岡技大	パルスレーザー堆積法を用いた酸化タングステン薄膜の作製		日本セラミックス協会 2008 年年会講演	③

		山忠親					
121	2008.3 .21	亀川貴行、浅見 廣樹、鈴木常 生、中山忠親	長岡 技大	酸化ニッケルに Cu <sup>2+</sup> を強制置換固 溶させた薄膜の光 学バンドギャップ 変化		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
122	2008.3 .21	日下 優、浅見 廣樹、鈴木常 生、中山忠親、 湯之上 隆、末 松久幸、新原皓 一	長岡 技大	双ターゲット同時 照射レーザー堆積 法による Sr-Ba-Eu-Dy-Al-O 傾斜組成薄膜の作 製		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
123	2008.3 .21	春田 茜、亀川 貴行、備前健 史、鈴木常生、 中山忠親、末松 久幸、新原皓一	長岡 技大	高压相銅酸化物高 温超伝導体用前駆 体の錯体重合法に よる合成		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
124	2008.3 .21	井口祥一、横尾 知行、江 偉 華、鈴木常生、 中山忠親、末松 久幸、新原皓一	長岡 技大	高電圧パルス電源 により生成される 大気圧非平衡プラ ズマを用いた硝酸 銀の合成		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
125	2008.3 .21	床井良徳、志小 田雄宇、石原 知、末松久幸、 鈴木常生、中山 忠親、新原皓一	長岡 技大	酸素雰囲気中パル ス細線放電法によ り合成したアルミ ナ微粒子の構成相		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
126	2008.3 .21	諏訪浩司、中山 忠親	長岡 技大	パルス細線放電法 における異種金属 細線への投入エネ ルギー評価		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
127	2008.3 .21	中山忠親	長岡 技大	高周波方式大気圧 バルクプラズマに よるナノ粒子複合 体の合成		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
128	2008.3 .21	床井良徳、鈴木 常生、中山忠 親、末松久幸、 新原皓一	長岡 技大	パルス細線放電法 を用いた粒径が数 ナノメートルのCu 超微粒子の作製と 粒径制御		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
129	2008.3 .21	末松久幸、久山 和志、鈴木常 生、中山忠親、 江 偉華、新原 皓一	長岡 技大	超微粒子作製用パ ルス細線放電装置 のためのオール半 導体パルス電源の 開発		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
130	2008.3 .21	志小田雄宇、床 井良徳、諏訪浩 司、末松久幸、 鈴木常生、中山 忠親、新原皓一	長岡 技大	プラズマ分光を用 いたパルス細線放 電法における AlN 超微粒子合成メカ ニズム		日本セラミ ックス協会 2008年 年会講演	③
131	2008.3 .21	浅見廣樹、大堀 鉄太郎、鈴木常	長岡 技大	Mgを固溶添加させ た Cr(N, O) 薄膜の		日本セラミ ックス協会	③

		生、中山忠親、末松久幸、新原皓一		機械的特性		2008年 年会講演	
132	2008.3 .28	末松久幸、床井良徳、諏訪浩司、鈴木常生、中山忠親、石原知、新原皓一	長岡 技大	パルス細線放電による窒化物超微粒子作製と粒径制御技術		応用物理学 関係連合講演会	③
133	2008.6 .23	Tadachika NAKAYAMA, Takashi MINAGAWA, Hisayuki SUEMATSU and Koichi NIIHARA (Invite)	長岡 技大	Fabrication of the Anisotropic Structured Nanosized Materials under the High Energy Density State		The 2 <sup>nd</sup> Anisotropic Science and Technology of Materials and Devices	③
134	2008.7 .23	T. Nakayama, S. Suzuki, M. Terauchi, H. Suematsu, K. Niihara ポスター	長岡 技大	Fabrication of the TiO <sub>2</sub> nanotube/metal nanoparticle systems with multifunctionality		2 <sup>nd</sup> International Congress on Ceramics	③
135	2008.7 .23	H. Asami, T. Suzuki, T. Nakayama, H. Suematsu, K. Niihara ポスター	長岡 技大	Synthesis and mechanical properties of Cr(N, O)-Mg thin films prepared by pulsed laser deposition		2 <sup>nd</sup> International Congress on Ceramics	③
136	2008.7 .18	末松久幸、床井良徳、中山忠親、鈴木常生、新原皓一	長岡 技大	パルス細線放電による超微粒子作製の新展開		第3回シナジェティックデバイスフォーラム	③
137	2008.9 .3	志小田雄宇、床井良徳、鈴木常生、中山忠親、末松久幸、新原皓一	長岡 技大	パルス細線放電法で作製されるAl <sub>2</sub> O <sub>3</sub> の冷却過程における温度測定		応用物理学 会学術講演会	③
138	2008.9 .3	中山忠親	長岡 技大	ナノインプリント法によるチタニア多孔体の合成		応用物理学 会学術講演会	③
139	2008.9 .17	中山忠親、金弘大、今城一嘉、吉村 淳、吉村 武	長岡 技大	ゲルキャスティングとナノインプリントによるアルミナ微細構造体の合成		日本セラミックス協会 第21回秋季シンポジウム	③
140	2008.9 .17	庄司 慎、鈴木俊太郎、諏訪浩司、藤原健志、中山忠親、鈴木常生、末松久幸、新原皓一	長岡 技大	液中レーザーアブレーションによる窒化ホウ素ナノシート		日本セラミックス協会 第21回秋季シンポジウム	③
141	2008.9	井口祥一、横尾	長岡	半導体開放スイッ		日本セラミ	③

	.17	知行、中山忠親、江 偉華、末松久幸、鈴木常生、新原皓一	技大	チ型ナノ秒パルス電源を用いた大気圧非平衡プラズマによる新規ナノ粒子合成手法の開発		ックス協会第21回秋季シンポジウム	
142	2008.9.17	寺内雅裕、鈴木俊太郎、中山忠親、関野 徹	長岡技大	超音波化学法により作製されたチタニアナノチューブと銀ナノ粒子の複合体における熱特性評価		日本セラミックス協会第21回秋季シンポジウム	③
143	2008.9.17	鈴木崇弘、中山忠親、鈴木常生、末松久幸、新原皓一	長岡技大	NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ナノポアスポンジにおける酢酸ブチルの吸脱着過程評価		日本セラミックス協会第21回秋季シンポジウム	③
144	2008.9.18	金 弘大、中山忠親、吉村 淳、今城一嘉、吉村 武	長岡技大	ナノインプリント手法による微細形態を有したアルミナ多孔体の合成		日本セラミックス協会第21回秋季シンポジウム	③
145	2008.9.18	床井良徳、鈴木常生、中山忠親、末松久幸、金子双男、新原皓一	長岡技大	有機物蒸気中でのパルス細線放電法を用いた有機物被覆銅ナノ粒子の作製		日本セラミックス協会第21回秋季シンポジウム	③
146	2008.9.22	鈴木常生、亀川貴行、中山忠親、末松久幸、新原皓一	長岡技大	Cuの強制置換固溶によるNiOの正方晶化と電気伝導		日本物理学会2008年秋季大会	③
147	2008.9.23	K. Niihara, T. Nakayama, H. Suematsu, T. Suzuki, T. Sekino (Invite)	長岡技大	Nano and Nanocomposite Ceramic Materials		The 3 <sup>rd</sup> Asia-Oceania Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	③
148	2008.9.23	T. Nakayama, T. Yokoo, S. Inokuchi, W. Jiang, H. Suematsu, T. Suzuki and K. Niihara	長岡技大	Novel Atmospheric Non-Equilibrium Plasma State with the Nanosec Pulsed High-Voltage Generator for Nanoprocessing		The 3 <sup>rd</sup> Asia-Oceania Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	③
149	2008.9.23	H. Suematsu, Y. Kusaka, T. Suzuki, T. Nakayama, T. Yunogami and K. Niihara (Invite)	長岡技大	Maximum Photoluminescence Properties in Compositionally Gradient (Ba, Sr, Eu) Al <sub>2</sub> O <sub>4</sub> Thin Films		The 3 <sup>rd</sup> Asia-Oceania Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	③
150	2008.9	B.H. Lee, Y.	長岡	New Approach for		The 3 <sup>rd</sup>	③

	.23	Tokoi, T. Nakayama, T. Suzuki, H. Suematsu and K. Niihara	技大	Synthesis of Ceria/Titania Composite by Laser Ablation in Aqueous Solution		Asia-Ocean ia Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	
151	2008.9 .23	H.D. Kim, T. Nakayama, J. Yoshimura, K. Imaki, T. Yoshimura, H. Suematsu, T. Suzuki and K. Niihara ポスター	長岡 技大	Fabrication of the Finestructured Alumina Materials with Nanoimprint Method		The 3 <sup>rd</sup> Asia-Ocean ia Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	③
152	2008.9 .23	H.B. Cho, M. Shoji, T. Fujiwara, T. Nakayama, T. Suzuki, H. Suematsu and K. Niihara ポスター	長岡 技大	Behaviors of BN Nanosheets in a Polysiloxane Matrix under High Electrical Field		The 3 <sup>rd</sup> Asia-Ocean ia Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	③
153	2008.9 .23	T. Ohori, H. Asami, J. Sirahata, T. Suzuki, T. Nakayama, H. Suematsu and K. Niihara ポスター	長岡 技大	Mechanical Property and Thermal Stability of Boron Carbide Films Prepared by RF Magnetron Sputtering		The 3 <sup>rd</sup> Asia-Ocean ia Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	③
154	2008.9 .23	Y. Tokoi, T. Suzuki, T. Nakayama, H. Suematsu, F. Kaneko and K. Niihara ポスター	長岡 技大	Relation of Plasma/Vapor Cooling Rate and Phase of TiO <sub>2</sub> Nanoparticles Prepared by Pulsed Wire Discharge		The 3 <sup>rd</sup> Asia-Ocean ia Ceramic Federation (AOCF-3) Conference	③
155	2008.1 0.6	K. Niihara, T. Nakayama, T. Kusunose (Invite)	長岡 技大	Nanocomposite Ceramic Materials with Unique Multifunctionality		Materials Science & Technology 2008 Conference & Exhibition (MS&T' 08)	③
156	2008.1 0.6	T. Nakayama, H. Kim, M. Terauchi, T. Sekino	長岡 技大	Fabrication of the Nanotube/Nanopart icle composites and its Thermal Properties		Materials Science & Technology 2008 Conference & Exhibition	③

						(MS&T' 08)	
157	2008.1 0.29	K. Niihara, T. Nakayama, H. Suematsu, T. Sekio (Keynote)	長岡 技大	Hybrid Nanocomposite materials and Processing for Sustainable Society Development		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
158	2008.1 0.29	Tadachika Nakayama (Invited)	長岡 技大	The Nobel Solution Process using the Extreme Energy State for Anisotropic Structured Nanomaterial		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
159	2008.1 0.29	H. Suematsu, M. Hirai, J. Inoue, H. Asami, T. Suzuki, T. Nakayama, K, Niihara (Invited)	長岡 技大	Hardening in CrN Thin Films with Nanosized Al-O Inclusions		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
160	2008.1 0.29	Hiroki Asami, Tetsutaro Ohori, Jun Shirahata, Tsuneo Suzuki, Tadachika Nakayama	長岡 技大	Microstructure and Mechanical Properties of Cr-Mg-N-O Thin Films		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
161	2008.1 0.29	Koji Suwa, Yuu Shikoda, Satoru Ishihara, Tadachika Nakayama, Tsuneo Suzuki, Hisayuki Suematsu, Weihua Jiang, Koichi Niihara	長岡 技大	Preparation of Colloid Silver by Pulsed Wire Discharge		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
162	2008.1 0.29	Yuu Shikoda, Yoshinori Tokoi, Tsuneo Suzuki, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Koichi Niihara	長岡 技大	Measurement of the Metal Vapor Cooling Speed During the Nanoparticle Formation by Pulsed Wire Discharge Method		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③



163	2008.1 0.29	Takahiro Suzuki, Tsuneo Suzuki, <u>Tadachika Nakayama,</u> Hisayuki Suematsu, Koichi Niihara	長岡 技大	Change in the Electrical Resistivity of NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> Nano Pore Sponge Compare Atmosphere Ar and Air		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
164	2008.1 0.29	Shouichi Inocuchi, Tomoyuki Yokoo, Tadachika Nakayama, Weihua Jiang, Tsuneo Suzuki, Hisayuki Suematsu, Koichi Niihara	長岡 技大	Fabrication of the Ag Based Materials using the Atmospheric Non-Equilibrium Plasma with the Pulsed High-Voltage Generator		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
165	2008.1 0.29	Masahiro Terauchi, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Tsuneo Suzuki, Koichi Niihara	長岡 技大	Thermal Properties and Characterization of the Titania Nanotube and Silver Nanoparticle Systems		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
166	2008.1 0.29	Tetsutaro Ohori, Hiroki Asami, Jun Sirahata, Tsuneo Suzuki, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Koichi Niihara	長岡 技大	Formation of Boron Nitride Thin Films with Metal Addition		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
167	2008.1 0.29	Yoshinori Tokoi, Tsuneo Suzuki, Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Futao Kaneko, Koichi Niihara	長岡 技大	Particle Size and Phase Control of TiO <sub>2</sub> Nanosized Powder Prepared by Pulsed Wire Discharge		The 1 <sup>st</sup> Internation al Symposium on Hybrid Materials and processing	③
168	2008.1 1.6	中山忠親、横尾 知行、井口祥 一、江 偉華、 鈴木俊太郎、末 松久幸、新原皓 一	長岡 技大	ナノ秒パルス電源 を用いた大気圧非 平衡プラズマによ る粒子合成		粉体粉末冶 金協会平成 20年度秋季 大会	③
169	2008.1 1.8	床井良徳、鈴木 常生、中山忠	長岡 技大	パルス細線放電法 におけるプラズマ		第18回電気 学会東京支	③

		親、末松久幸、金子双男（新大）、新原皓一		蒸気 / 生成時のアーク放電の影響		部新潟支所研究発表会	
170	2008.1 1.8	Hong Dae Kim, Tadachika Nakayama, Takeshi Yoshimura, Hisayuki Suematsu, Tsuneo Suzuki and Koichi Niihara	長岡技大	Porous Alumina patterns fabricated by Nanoimprint Method using Polyviny alcohol		第18回電気学会東京支部新潟支所研究発表会	③
171	2008.1 1.11	Koichi Niihara, T. Nakayama, H. Suematsu, T. Sekino, T. Kusunose (Invite)	長岡技大	Unique Multi Functional Materials Based on Nanocomposite Concept		The 9 <sup>th</sup> International Symposium on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications	③
172	2008.1 1.15	Koichi Niihara, Tadachika Nakayama and Hisayuki Suematsu (Invite)	長岡技大	Hybrid Nanocomposite Materials and Processing		1 <sup>st</sup> International Symposium on Advanced Synthesis and Processing Technology for Materials	③
173	2008.1 1.15	Tadachika Nakayama, Shuntaro Suzuki, Makoto Shoji, Takeshi Fujiwara, Hisayuki Suematsu, Tsuneo Suzuki and Koichi Niihara	長岡技大	Fabrication of the BN Ag Nanosheet with the high crystallinity using the under Solution Laser Abration Method		1 <sup>st</sup> International Symposium on Advanced Synthesis and Processing Technology for Materials	③
174	2008.1 1.21	林 佳樹、床井良徳、鈴木常生、中山忠親、末松久幸、新原	長岡技大	パルス細線放電法を用いた鉄超微粒子の作製と特性評価		応用物理学会北陸・信越支部学術講演会	③

		皓一					
	2008.1 1.21	鈴木俊太郎、今城一嘉、吉村淳、鈴木常生、中山忠親、末松久幸、新原皓一	長岡技大	ナノインプリント法を用いた燃料電池用高分子膜への新規表面修飾技術		応用物理学会北陸・信越支部学術講演会	③
175	2008.1 2.8	Koichi Niihara (Invite)	長岡技大	Nano and Nanocomposite Ceramic Materials with Unique Multifunctionality		The 1 <sup>st</sup> China International Symposium on Particle Technology	③
176	2008.9 .10	Tadachika Nakayama, Hong Dae Kim, Jun Yoshimura, Kazuyoshi Imaki, Takeshi Yoshimura, Hisayuki Suematsu, Tsuneo Suzuki, Koichi Niihara (Invite)	長岡技大	Submicron Sized Anisotropic Structured Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> via Nanoimprint		IUMRS-ICA 2008	③
177	2008.1 2.15	Koichi Niihara, Tadachika nakayama, Hisayuki Suematsu, Tohru Sekino and Takafumi Kusunose (Keynote Lecture)	長岡技大	Nano and Nanocomposite Ceramic Materials with Multi Functionality -What They Were, and What They Will Be-		The 21 <sup>st</sup> JSPS-KOSEF Core University Program (CUP) Seminar between Japan and Korea	③
178	2008.1 2.15	Tadachika Nakayama, Shuntaro Suzuki, Makoto Shoji, Takeshi Fujiwara, Hisayuki Suematsu, Tsuneo Suzuki, Kwang Bo Shin, Soo Wohn Lee, Zhengyi Fu, and Koichi Niihara	長岡技大	Fabrication of the Nanosheet with the high crystallinity using the Under Solution Laser Abration Method		The 21 <sup>st</sup> JSPS-KOSEF Core University Program (CUP) Seminar between Japan and Korea	③
179	2008.1 2.15	Hiroki Asami, Tetsutaro Ohori, Jun Shirahata, Tsuneo Suzuki,	長岡技大	The Solid Solute Effect of Oxygen and Magnesium to CrN Hard Coating Films by Pulsed		The 21 <sup>st</sup> JSPS-KOSEF Core University Program	③

		Tadachika Nakayama, Hisayuki Suematsu, Yshio Matsui, Kwang Bo Shim, Soo Wohn Lee, Zhengyi Fu and Koichi Niihara ポスター		Laser Abration Method		(CUP) Seminar between Japan and Korea	
180	2008.1 2.15	Myoung-Jea Cho, Sung-Ho Kim, Takume Kusunose, Tadachika Nakayama, Tohru Sekino, Koichi Niihara ポスター	長岡 技大	h-BN Dispersed Silica Based Hybrid Coatings for Corrosion Protection		The 21 <sup>st</sup> JSPS-KOSEF Core University Program (CUP) Seminar between Japan and Korea	③
181	2008.2 .25	Young-Keun Jeong, Kwang-Ryul kim, Kwang-Ho Kim, Koichi Niihara (Invite)	長岡 技大	Laser Microfabrications of Alumina-Silicon Carbide Nanocomposites		The 17 <sup>th</sup> JSPS-KOSEF Core University program (CUP) Seminar between Japan and Korea	③
182	2008.1 0.28	Tohru Sekino, Youn-Gyu Hana, Koichi Niihara (Invite)	長岡 技大	Organic/inorganic Nanohybrids with Pressure Sensing Functions		The 1 <sup>st</sup> International Symposium on Hybrid Materials and Prpcessing	③

○三菱化学（株）

No. (関係 箇所)	発表日	著者	所属	題名	学会等の名 称	巻・ 号・ ページ	備考 (開催 場所)
1 (3.2.1)	June 9-12, 2008	J. Jiu, et al.	大阪大 学	Large-scale synthesis of micrometer-sc ale single-crystal gold	2008 International Materials Research Conference		Chongqi ng, China

				nanosheets by polyol process			
2 (3.2.1)	August 17-20, 2008	J. Jiu, et al.	大阪大学	Synthesis of Ag nanorods and application to soft die attaching	7th IEEE Conference on Polymers & Adhesives in Microelectronics & Photonics		Germany
3 (3.2.1)	January 22, 2009	Jinting Jiu, et al.	大阪大学	Preparation of Silver Nanorods: Affect of Additive Agent	The 12th SANKEN International Symposium		大阪
4 (3.2.1)	予定) 2009年9月	楠瀬尚史	大阪大学	$\beta$ 型窒化ケイ素ナノワイヤーの合成	日本セラミックス協会第22回秋季シンポジウム		愛媛大学
5 (3.2.2)	2008年10月	原田美由紀、長沼香保里、松本真実、越智光一	関西大学	メチル分岐を有するターフェニル型液晶性エポキシ樹脂の合成とキャラクターゼーション	第58回ネットワークポリマー講演討論会講演要旨集	269-270	
6 (3.2.2)	2008年12月	原田美由紀、安藤純一郎、長沼香保里、越智光一	関西大学	メチル分岐を有するターフェニル型液晶性エポキシ樹脂の合成とキャラクターゼーション	日本接着学会関西支部第4回若手研究者の会要旨集	4	
7 (3.3.2)	2009年5月	原田美由紀、安藤純一郎、	関西大学	ターフェニル型液晶性エポキシ樹脂の合成と	第58回高分子学会年次大会予稿集		

		松本真 実、越 智光一		磁場配向挙 動			
8 (3.2.2)	2009年 5月	原田美 由紀、 倉田 透、山 木基 弘、越 智光一	関西大 学	ターフェニ ル型ツイン メソゲンエ ポキシ樹脂 の合成とキ ャラクタリ ゼーション	第58回高分 子学会年次 大会予稿集		
9 (3.3.2)	予定) 2009年 9月	○原田 美由 紀・安 藤純一 朗・越 智光一	関西大 学	ターフェニ ル型液晶性 エポキシ樹 脂硬化物の 磁場配向挙 動	第58回高分 子討論会予 稿集,p		
10 (3.2.2)	予定) 2009年 9月	原田美 由紀・ ○倉田 透・越 智光一	関西大 学	新規ターフ ェニル型ツ インメソゲ ンエポキシ 樹脂の合成 とキャラク タリゼーシ ョン	第58回高分 子討論会予 稿集,p		
11 (3.3.2)	予定) 2009年 11月	○原田 美由 紀、安 藤純一 朗、越 智光一	関西大 学	磁場配向に よるターフ ェニル型液 晶性エポキ シ樹脂の高 熱伝導化	第18回ポリ マー材料フ ォーラム予 稿集、p		
12 (3.2.3)	2008年 10月9 日	平野 寛、長 谷川喜 一、上 利泰幸	大阪市 工研	熱分解 GC/MSを用 いたシラン カップリン グ剤処理の 評価	第58回ネッ トワークポ リマー講演 討論会		合成樹 脂工業 協会

13 (3.2.3)	2008年 10月10日	上利泰幸	大阪市 工研	複合高分子材料のフィルム面方向の有効熱拡散率の測定	第29回日本熱物性シンポジウム		日本熱物性学会
14 (3.2.3)	2009年 9月	平野寛、長谷川喜一、上利泰幸	大阪市 工研	熱分解GC/MS法を用いたカップリング剤処理無機フィラーの表面状態の分析	第58回高分子討論会		
15 (3.2.3)	2009年 9月	上利泰幸、平野寛、長谷川喜一	大阪市 工研	カップリング剤によるBNナノ粒子表面処理方法の検討と、そのエポキシ樹脂複合材への効果	第58回高分子討論会		
16 (3.2.3)	2009年 9月	長谷川喜一、上利泰幸、平野寛	大阪市 工研	高熱伝導性ナノフィラーとフェノール樹脂粒子とのハニカム状コンポジットとその熱伝導特性	第58回高分子討論会		
17 (3.2.3)	2008年 10月10日	加藤孝、永原孝俊、中村貴史、上利泰幸、越	大阪市 工研／ 関西大 学	重合性液晶材料（PLCs）を利用したアクリル系配向フィルムの熱伝導特性	第29回日本熱物性シンポジウム		日本熱物性学会

		智光一					
18 (3.2.3)	2009年 1月28 日	上利泰 幸	大阪市 工研	複合系高熱 伝導性樹脂 の現状	第36期第4 回特別講演 会		エポキ シ樹脂 協会
19 (3.2.3)	2009年 2月23 日	上利泰 幸	大阪市 工研	新しい放熱 材料の開発 と熱伝導性 の解析	技術情報協 会セミナー		技術情 報協会
20 (3.2.3)	2009年 3月10 日	上利泰 幸	大阪市 工研	高熱伝導性 プラスチック の開発と その現状	第232回プ ラスチック 技術講演会		プラス チック 技術協 会
21 (3.2.3)	予定) 2009年 7月	上利泰 幸	大阪市 工研	熱伝導性樹 脂の開発と その現状	次世代接着 材料研究会 PART II (第 6回例会)		日本接 着学会

○東レ・ダウコーニング（株）

No	発表日	著者	所属	題名	学会等の名称	巻・ 号・ ペー ジ	備考 (開催場 所)
1	2008.3	古館、小 川、大島	東大 院、東 レ・ダ ウコー ニング	高温高压水によ るポリマー系ナ ノハイブリッド 材料の合成	化学工学会第 73年会		浜松
2	2008.5	小川、古 館、大島	東レ・ ダウコ ーニン グ、東 大院	高温高压水によ るケイ素系ハイ ブリッド材料の 合成	高分子学会第 57年次大会		横浜
3	2008.5	小川、渡 邊、大島	東レ・ ダウコ ーニン グ、東 大院	高温高压水を利 用したケイ素系 材料の無触媒合 成	高分子学会第 57年次大会		横浜



4	2009.3	渡邊、小川、大島	東大院、東レ・ドウコーニング	高温高圧水を利用したシリカ含有ハイブリッド材料の合成	化学工学会第74年会		横浜
5	2009.5	Hayashi, Ikoma, Shibata, Ogawa, Oshima	The Univ. Tokyo, Dow Corning Toray	Surface modification of copper nanoparticles with organosiloxanes in supercritical water	9th International Symposium on Supercritical Fluids		France

#### 5. 特許

- (財) 化学技術戦略推進機構、(独) 産業総合研究所、東北大学、東京工業大学、長岡技術科学大学、九州大学

No	出願者	出願番号	国内 外国 PCT	出願日	状態	名称	発明者
1	株式会社 アイテック・ 国立大学法人 東北大学	特願 2009- 34482	国内	2009/2/17	出願	原料供給方法並びにその装置	
2	株式会社 アイテック・ 国立大学法人 東北大学	特願 2009- 34483	国内	2009/2/17	出願	製品回収方法並びにその装置	
3	株式会社 アイテック・ 国立大学法人 東北大学	特願 2009- 34484	国内	2009/2/17	出願	複動式流体圧シリンダ	
4	電気化学工業 株式会社	特願 2009- 111845	国内	2009/5/1	出願	熱伝導性成形体とその用途	
5	電気化学工業		国内		手続	窒化ホウ素粉末	

	株式会社 国立大学法人 東北大学					の表面酸化方法	
6	戸田工業 株式会社 国立大学法人 東北大学		国内		手続	ジルコニア粒子 及びその製造方 法、並びにジル コニア粒子を含 有する分散液	
7	東京工業大学	特願 20 08-1 2092 6	国内	2008 年5月7 日	出願中	高分子-無機ハ イブリッド光学 材料	鈴木温 久・安藤 慎治
8	東京工業大学	特願 20 08-2 2964 1	国内	2008 年9月8 日	出願中	熱伝導性材料, 熱伝導性シー ト, 層間絶縁膜 及びその製造方 法	依藤大 輔・安藤 慎治
9	丸山豊	H20PR0-8  (産総研 知財管理 番号)		2008.04.  (登録		TextImageMaker (プログラム 著作権)	丸山豊、 Kenyatte Richards on
10	丸山豊	H21PR0-9  (産総研 知財管理 番号)		2009.03.  (登録		RamanXML (プログラム 著作権)	丸山豊、 Kenyatte Richards
11	丸山豊	H21PR0-9  (産総研 知財管理 番号)		2009.03.  (登録		XMLimport (プログラム 著作権)	丸山豊、 Kenyatte Richards
12	丸山豊	H21PR0-9  (産総研		2009.03.  (登録		XMLexport (プログラム 著作権)	丸山豊、 Kenyatte Richards

		知財管理 番号)					
13	丸山豊	H21PR0-9  (産総研 知財管理 番号)		2009. 03.  (登録		XMLingdef (プログラム 著作権)	丸山豊、 Kenyatte Richards
14	日油、東北大 (予定)		国内 (予定)		出願準 備中	(仮)金属酸化 物微粒子の表面 修飾方法および 高屈折率材料	森下丈 弘、阿尻 雅文他 (予定)
15	住友大阪セメ ント、東北大 (予定)		国内 (予定)		出願準 備中	(仮)2段階重 合法による金属 酸化物微粒子ー 有機高分子ハイ ブリッド材料	柳澤恒 夫、杉原 興浩他 (予定)
16	住友大阪セメ ント、東北大 (予定)		国内 (予定)		出願準 備中	(仮)2段階重 合法による金属 酸化物微粒子ー 有機高分子ハイ ブリッド材料の 製造方法	柳澤恒 夫、杉原 興浩他 (予定)
17	新日鐵化学、 東北大(予 定)		国内 (予定)		出願準 備中	(仮)表面修飾 粒子	中川孝 行、阿尻 雅文他 (予定)
18	新日鐵化学 (予定)		国内 (予定)		出願準 備中	(仮)表面修飾 粒子の製造方法	中川孝 行、他 (予定)

○三菱化学(株)

No. (関係 箇所)	出願者	出願番号	国内 外国 PCT	出願日	状態	名称	発明者
1 (3.2.1)	大阪大 学			2009年9 月	準備中	高熱伝導非酸化 物フィラーの製 造方法	楠瀬尚史
2	関西大			2009年11	準備中	液晶性エポキシ	原田美由

(3.2.2)	学			月		樹脂	紀、越智 光一
3 (3.3.2)	油化電 子			2009年10 月	準備中	高熱伝導樹脂組 成物	西川学
4 (3.5)	三菱化 学			2009年10 月	準備中	高熱伝導樹脂組 成物	松下泰 典、石川 広典

○東レ・ダウコーニング（株）

No	出願者	出願番号	国内 外国 PCT	出願日	状態	名称	発明者
1	Dow Corning Totay, the Univ. Tokyo	特願 2008-3274 07	日本	2009/12/ 25	出願	ポリシロキサン 組成物およびそ の製造方法	小川、大 島
2	Dow Corning Totay, the Univ. Tokyo	特願 2008-3275 12	日本	2009/12/ 25	出願	ポリシロキサン 組成物およびそ の製造方法	小川、大 島

6. 受賞

●学会賞

日本セラミックス協会 協会賞 進歩賞（中山忠親）長岡岐大

●国際会議の貢献賞

Distinguished Service Award, The 25<sup>th</sup> Korea-Japan International Seminar Ceramics  
（新原 皓一）長岡岐大

●国際会議のベストポスター賞

Best Poster Award, International Symposium on Multifunctional Ceramic Materials  
Based on Nanotechnology (ISMCN2009)（新原皓一、中山忠親）長岡岐大

●国際会議の優秀発表賞

Best Presentation Award, 1<sup>st</sup> International Symposium on Hybrid Materials and  
Processing (HyMaP2008)（新原皓一、中山忠親）長岡岐大

●国内学会のベストポスター賞

日本セラミックス協会2008年年会優秀発表賞（床井良徳、産学官支援研究員）長岡岐

大

●国内学会の優秀発表賞

2007高分子学会東北支部研究発表会若手優秀発表賞（横山喬大，増原 陽人，笠井均，及川英俊） 東北大

●国内学会の優秀発表賞

2008高分子学会東北支部研究発表会若手優秀発表賞（中村美佳，小野寺恒信，増原 陽人，笠井均，根本修克，及川英俊） 東北大

●国内学会の奨励賞

平成19年度高分子研究奨励賞（増原 陽人） 東北大

●奨励賞

第48回原田研究奨励賞（増原 陽人） 東北大

●平成19年度 トーキョー科学技術振興財団研究奨励賞

無機ハイブリッド液晶材料の開発研究

トーキン科学技術振興財団,(2008.3.10),（蟹江澄志） 東北大

VI. 参考文献

III 2. 2

1)

2)

III 2. 3

1)

2)

VI. 参考文献

III 3. 2

1) Preparation of Ag nanorods with high yield by polyol process

Jinting Jiu, Keiichi Murai, Doseop Kim, Keunsoo Kim, Katsuaki Suganuma

Materials Chemistry and Physics 114 (2009) 333–338

III 3. 3

1) 化学工学便覧 改訂四版 (丸善), 788 (1978)

2) 高橋, 北村: 化学工学, **35**, 637 (1971)

III 3. 4

1) D. G. Cahill, *Rev. Sci. Instrum.*, 61, p.802 (1990)

2) ISO/TTA4:2002(E) "Measurement of thermal conductivity of thin films on silicon substrates"

3) Yamane, *Proc. 25th Japan Symp. Thermophys. Prop.*, 25, p.272 (2005)

4) I. Hatta, Y. Sasuga, R. Kato, A. Maesono, *Rev. Sci. Instrum.*, 56, p.1643 (1985)

5) T. Yamane, Y. Mori, S. Katayama, M. Todoki, *J. Appl. Phys.*, 82, p.1153 (1997)

6) 馬場哲也; 「新編伝熱工学の進展」第3巻 (日本機械学会編) 163-226 (養賢堂, 2000).

7) T. Baba, *Proceedings of 10th International Workshop on THERMAL INVESTIGATION OF ICs and Systems* (Sophia Antipolis, France, 2004) pp.241-249.

8) C. A. Paddock, G. L. Eesley, *J. Appl. Phys.*, 60, p.285 (1986)

9) W. S. Capinski, H. J. Maris, *Rev. Sci. Instrum.*, 67, p.2720(1996)

10) W. S. Capinski, H. J. Maris, T. Ruf, M. Cardona, K. Ploog, D. S. Katzer, *Phys. Rev. B*, 59, p.8105 (1999)

11) B. C. Daly, H. J. Maris, A. V. Nurmikko, M. Kuball, J. Han, *J. Appl. Phys.*, 92, p.3820 (2002)

12) B. C. Daly, H. J. Maris, W. K. Ford, G. A. Antonelli, L. Wong, E. Andideh, *J. Appl. Phys.*, 92, p.6005 (2002)

13) H. Lyeo, D. G. Cahill, B. Lee, J. R. Abelson, M. Kwon, K. Kim, S. G. Bishop, B. Cheong, *Appl. Phys. Lett.*, 89, p.151904 (2006)

14) N. Taketoshi, T. Baba and A. Ono, *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.38, 1999, L1268-1271.

15) N. Taketoshi, T. Baba and A. Ono, *Meas. Sci. Technol.*, IOP, Bristol, vol.12, 2001, pp.2064-2073.

16) 産業技術総合研究所計量標準総合センター

<http://www.nmij.jp/kosei/user.html>

17) M. Kuwahara, O. Suzuki, N. Taketoshi, Y. Yamakawa, T. Yagi, P. Fons, K. Tsutsumi, M. Suzuki T. Fukaya J. Tominaga, T. Baba, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 45, No.2B, p.1419 (2006)

18) T. Yagi, K. Tamano, Y. Sato, N. Taketoshi, T. Baba, Y. Shigesato, *J. Vac. Sci. Technol. A*, 23, p.1180 (2005).

19) T. Baba, *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.48, No.5 2009, in press.

20) N. Taketoshi, M. Ozawa, H. Ohta, T. Baba, *AIP Conference Proc.* 463, 10, p.315 (1999)

21) T. Yagi, N. Taketoshi, H. Kato, *Physica C*, 412–414, p.1337 (2004)

- 22) S. Ikeuchi, T. Yagi, H. Kato, *J. Cryp. Soc. Jpn.*, 40, p.335 (2005)
- 23) K. E. Goodson and M. Asheghi, *Microscale Thermophys. Eng.*, 1(1997)225.
- 24) 田口良弘、地紙平、齋木敏治、長坂雄次：第27回日本熱物性シンポジウム、J132

III 4. 2

- 1) 陶究、化学工学、 **71** 、 492-495 、 ( 2007 )

III 4. 3

- 1) T. Ogawa, et. al., *J. Supercrit. Fluids*, **2008**, *45*, 80.
- 2) T. Adschiri, et. al., *Ind. Eng. Chem. Res.* **2000**, *39*, 4901-7.
- 3) K. Shibayama, et. al., *J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem.* **1965**, *3*, 2637.