

「希少金属代替材料開発プロジェクト
研究開発項目⑨-1, ⑨-3, ⑩」
(事後評価) 分科会
資料 5-1

「希少金属代替材料開発プロジェクト／
「Nd-Fe-B 系磁石を代替する新規永久磁石」及び
「排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代
替材料開発、透明電極向けインジウムを代替する
グラフェンの開発」

事業原簿【公開】

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 電子・材料・ナノテクノロジー部
-----	--

—目次—

概 要

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	I-1
1.2 実施の効果（費用対効果）	I-3
2. 事業の背景・目的・位置づけ	I-6
2.1 事業の背景	I-6
2.2 事業の目的	I-6
2.3 事業の位置づけ	I-8
2.4 海外の研究状況	I-11

II. 研究開発マネジメントについて

1. 事業の目標	II-1
1.1 目標設定根拠	II-1
1.2 全体目標	II-15
1.3 詳細目標と設定根拠	II-15
2. 事業の計画内容	II-22
2.1 研究開発の内容	II-22
2.2 研究開発の実施体制	II-37
2.3 研究の運営管理	II-40
2.4 研究開発成果の実用化に向けたマネジメント	II-40
3. 情勢変化への対応	II-42
3.1 レアアースの供給量削減に対する対応	II-42
3.2 レアアースの安定確保に関する緊急対策（平成22年度補正予算）	II-42
3.3 レアアース日米欧三極R&Dワークショップの開催	II-43

⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

III. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果	(⑨-1, ⑨-3-1)-1
1.1 研究開発の内容	(⑨-1, ⑨-3-1)-1
1.2 全体の成果	(⑨-1, ⑨-3-1)-2
2. 研究開発項目毎の成果	(⑨-1, ⑨-3-1)-4
2.1 成果の最終目標の達成度	(⑨-1, ⑨-3-1)-4

2.2 知的財産権等の取得及び標準化の取り組み	(9-1, 9-3-1)-14
IV. 実用化の見通しについて	
1. 実用化の見通し	1 (9-1, 9-3-1)-14
1.1 成果の実用化可能性	(9-1, 9-3-1)-14
1.2 波及効果	(9-1, 9-3-1)-15

⑨-3-2 Nd-F e-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

III. 研究開発成果について	
1. 事業全体の成果	(9-3-2)- 1
1.1 研究開発の内容	(9-3-2)- 1
1.2 全体の成果	(9-3-2)- 2
2. 研究開発項目毎の成果	(9-3-2)- 4
2.1 成果の最終目標の達成度	(9-3-2)- 4
2.2 知的財産権等の取得及び標準化の取り組み	(9-3-2)-18
IV. 実用化の見通しについて	
1. 実用化の見通し	(9-3-2)-19
1.1 成果の実用化可能性	(9-3-2)-19
1.2 波及効果	(9-3-2)-20

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

III. 研究開発成果について	
1. 事業全体の成果	(10-1A)- 1
2. 研究開発項目毎の成果	(10-1A)- 3
2.1 研究開発項目毎の成果（要約）	(10-1A)- 3
2.2 知的財産の取得及び標準化の取り組み	(10-1A)- 9
IV. 実用化の見通しについて	
1. 実用化の見通し	(10-1A)-10
1.1 成果の実用化可能性	(10-1A)-10
1.2 実用化シナリオ	(10-1A)-10
1.3 波及効果	(10-1A)-11

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

III. 研究開発成果について	
1. 事業全体の成果	(10-1B)- 1
2. 研究開発項目毎の成果	(10-1B)- 7
IV. 実用化の見通しについて	

1. 実用化の見通し	(10-1B)- 116
1.1 成果の実用化可能性	(10-1B)- 116
1.2 波及効果	(10-1B)- 117

⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

Ⅲ. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果	(10-2)- 1
1.1 研究開発の成果と概要	(10-2)- 2
2. 研究開発項目毎の成果	(10-2)- 7
2.1 成果の内容と目標の達成度	(10-2)- 7
2.2 成果の意義	(10-2)- 9
2.3 知的財産の取得の取り組みおよび成果の普及	(10-2)-10

Ⅳ. 実用化の見通しについて

1. 実用化の見通し	(10-2)-11
1.1 成果の実用化可能性	(10-2)-11
1.2 波及効果	(10-2)-13

(添付資料)

- ・ ナノテク・部材イノベーションプログラム基本計画
- ・ 健康安心イノベーションプログラム基本計画
- ・ プロジェクト基本計画
- ・ 技術戦略マップ（分野別技術ロードマップ）
- ・ 事前評価関連資料（事前評価書、パブリックコメント募集の結果）
- ・ 特許論文リスト

概要

		最終更新日	平成24年11月22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 環境安心イノベーションプログラム（資源制約克服／3R）		
プロジェクト名	希少金属代替材料開発プロジェクト	プロジェクト番号	P08023
担当推進部/担当者	<ul style="list-style-type: none"> ・研究開発項目⑨-1、⑨-3-1、⑨-3-2 電子・材料・ナノテクノロジー部 下前直樹（平成23年4月～平成24年11月現在） 川上信之（平成23年1月～平成23年3月） 三宅倫幸（平成22年2月～平成22年12月） ・研究開発項目⑩-1A、⑩-1B、⑩-2 電子・材料・ナノテクノロジー部 柳喜芳（平成23年3月～平成24年11月現在） 		
0. 事業の概要	<p>希少金属は、我が国の産業分野を支える高付加価値な部材の原料であり、近年需要が拡大している。しかし、途上国においても著しく需要が拡大していることや、他の金属と比較して希少であることから、その代替性も著しく低いとともに、その偏在性ゆえに特定の産出国への依存度が高い等から、我が国の中長期的な安定供給確保に対する懸念が生じており、実際、平成22年7月にはレアアースの供給懸念が顕在化した。</p> <p>本プロジェクトは、Nd-Fe-B系磁石向けネオジウムおよびジスプロシウム、排ガス浄化向けセリウム、透明電極向けインジウムを研究対象元素とした代替材料の開発、または使用量低減技術の開発を目的とし、本プロジェクトを通じて持続可能な社会構築に貢献する。</p>		
I. 事業の位置付け・必要性について	<p>【NEDOが関与する意義】</p> <p>本研究開発は、「ナノテク・材料分野」に列挙されている「戦略重点科学技術」のうち「資源問題解決の決定打となる希少資源・不足資源代替材料革新技術」にあたるものである。明確な政策意図のもと行われる事業であり、レアメタル・レアアースの使用量を低減するために産官学の連携を取った高度な技術開発が必要であること、1企業での開発リスクが非常に高いこと等の観点からNEDOが推進すべき研究開発プロジェクトである。研究開発対象元素は、研究開始前にリスク調査を行うことで、国としてリスクの高い元素を定期的に把握し選定している。また、文部科学省/JSTの元素戦略プロジェクトと連携し基礎から実用化までの間隙のない研究開発支援を府省連携で進めており我が国の科学技術力の向上という観点からも極めて意義が高いものである。</p> <p>【実施の効果】</p> <p>(1) ⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究 ⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築 ⑨-3-2 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発</p> <p>2008年のNd-Fe-B系焼結磁石の国内生産量は19,000～20,000tonであり、ネオジウムの原料であるジウム（ネオジウムとプラセオジウムの混合物）の使用量は5,000～5,300tであった。また、2011年のNd-Fe-B系焼結磁石の国内生産量は9,800～10,500tであり、ジウム使用量は4,000～4,300tと2008年に比べ減少している。これは需要家の一部で希土類の相場高騰によるネオジウム磁石離れを引起したためであるが、ハイブリット車等の駆動用モータは、急な設計変更ができないため、この分野でのNd-Fe-B系焼結磁石使用量は堅調に推移する。2011年のジウムの需要金額は約11億ドル（単価266\$/kg）、892億円である。（\$は米国ドル。為替レートは78円/\$で計算。以下同様。）</p> <p>本技術開発により、ネオジウム磁石を100%削減可能となった場合、4,300t、892億円の削減効果があり、本プロジェクトによる削減効果は大きく、日本の産業分野へ貢献する重要な技術である。</p>		

2008年のネオジム系焼結磁石に使用されたジスプロシウムは750tであった。2011年の使用量予測は600tであり2008年比減量している。これは需要家の一部で希土類の相場高騰により、ジスプロシウム添加量を削減したネオジム磁石への代替やネオジム磁石離れを引起したためであるが、ハイブリット車等の駆動用モータは、急な設計変更ができないため、この分野でのジスプロシウム使用量は堅調に推移している。2011年のジスプロシウム需要金額は約13億ドル（単価2,123\$/kg）、994億円である。

本技術開発により100%削減可能となった場合、およそ600t、994億円の削減効果があり、本プロジェクトによる削減効果は大きく、日本の産業分野へ貢献する重要な技術である。

- (2) ⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

- ⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

2009年実績でセリウムの生産量は全世界で約5万tであり、その大半が中国で生産されている。国内での需要量は年間11,350tであり、用途別では、研磨材向けが9,000t（79%）、次いで排ガス触媒向けが1,450t（13%）となっている。本研究開発により30%削減が可能になった場合、435tの削減効果がある。これは、2011年の酸化セリウム価格（99\$/kg）で計算すると、34億円の削減効果がある。また、これらの技術開発は、自動車産業（2009年の市場規模で約15兆円）の市場確保にも大きく寄与する。

- (3) ⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

2006年実績でインジウムの生産量は全世界で480tであり、その大半が中国で生産されている。この内、ITOターゲット用として430tが使用されている。2011年の日本国内のITOターゲット使用量の実績値は929tであり、本研究開発により50%削減が可能になった場合、465tの削減効果がある。これは、2011年のインジウム地金相場価格（730\$/kg）では、265億円の削減効果がある。また、これらの技術開発は、液晶パネル（生産規模：43億9100万枚 市場規模予測14兆円（2013年予測））や太陽電池への応用や装置等の関連産業を含めて、日本の産業競争力の向上への貢献が期待される。

【実施の効果（費用対効果）】

1. 定量効果

(1) 費用：37億円

(2) 効果：2,185億円/年

内、892億円/年（永久磁石向けネオジム削減）

994億円/年（永久磁石向けジスプロシウム削減）

34億円/年（排ガス触媒向けセリウム削減）

265億円/年（透明電極向けインジウム削減）

2. 定性効果

本プロジェクトでターゲットとしているネオジム、ジスプロシウムは、ネオジム磁石としてHEV車、EV車、風力発電機に、また、セリウムは自動車に、インジウムはカラーテレビや携帯端末など、日本の産業競争力を支える製品に使われている。本開発によるレアメタルへの依存リスクの軽減は、本対象のみならず日本の産業競争力の向上に寄与する。

【事業の背景・目的・位置付け】
 現在及び将来において我が国経済を牽引していく産業分野において、競争力を発揮し世界を勝ち抜いていくために、多様な連携（川上・川下産業の垂直連携、材料創製・加工との水平連携）による研究開発の推進により、当該市場のニーズに応える機能を実現する上で不可欠な高品質・高性能の部品・部材をタイムリーに提供し、又は提案することができる部材の基盤技術を確立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」、及び環境・資源制約を克服し循環型経済システムを構築することを目的とした「環境安心イノベーションプログラム」の一環として本プロジェクトを実施する。

希少金属は、我が国産業分野を支える高付加価値な部材の原料であり、近年その需要が拡大している。しかし、途上国における著しい需要の拡大や、そもそも他の金属と比較して、金属自体が希少であり、代替性も著しく低く、その偏在性ゆえに特定の産出国への依存度が高いこと等から、我が国の中長期的な安定供給確保に対する懸念が生じている。これに対する具体的な対策として、平成 18 年 6 月、資源エネルギー庁から報告された「非鉄金属資源の安定供給確保に向けた戦略」において、(1)探鉱開発の推進、(2)リサイクルの推進、(3)代替材料の開発、(4)備蓄、等が整理され、現在それぞれにおける具体的な対策が進められている。

本研究開発は、この総合的な対策の一部として非鉄金属資源の代替材料及び使用量低減技術の確立を目的としている。

II. 研究開発マネジメントについて

事業の目標	最終目標（各研究開発項目終了年度末）では、希少金属元素の使用原単位（一製品当たり）について現状と比較して下記に示した低減が可能とな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ポレベルでサンプル提供できる（試料提供）水準に至るまでの技術を確立する。また、製品の機能や製造コストは少なくとも現状と同等を維持することを前提とする。								
	研究開発項目	対象元素						使用原単位の低減目標値	
	⑨-1	永久磁石向けジスプロシウム (Dy)						現状から 30%以上低減	
	⑨-3-1 ⑨-3-2	永久磁石向けネオジム (Nd)、ジスプロシウム (Dy)						現状から 100%低減(代替)	
	⑩-1A、⑩-1B ⑩-2	排ガス触媒向けセリウム (Ce) 透明電極向けインジウム (In)						現状から 30%以上低減 現状から 50%以上低減	
事業の計画内容	主な実施事項	H19fy	H20fy	H21fy	H22fy	H23fy	H24fy	H25fy	総額
	①透明電極向けインジウム使用量低減技術開発								
	②透明電極向けインジウム代替材料開発								
	③希土類磁石向けジスプロシウム低減技術開発								
	④超硬工具向けタングステン使用量低減技術開発								
	⑤超硬工具向けタングステン代替材料開発								
	⑥-1 排ガス浄化向け白金族/日産自動車他								
	⑥-2 排ガス浄化向け白金族/産総研他								

	⑦-1 精密研磨向けセリウム／三重県他																						
	⑦-2 精密研磨向けセリウム／立命館大学他																						
	⑧ 蛍光ランプ向けテルビウム・ユウロピウム																						
	⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石																						
	⑨-2 超軽量高性能モータ向けイットリウム系複合材料																						
	⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新磁石／東北大学他																						
	⑨-3-2 Nd-Fe-B系磁石を代替する新磁石／大阪大学他																						
	⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム／名古屋工業大学他																						
	⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム／東北大学他																						
	⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェン																						
	平成 22 年度リスク調査																						
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) 契約種類: ○をつける (委託 ○) (助成 ()) (共同研究 ()) (負担率 ())	会計・勘定	H19fy	H20fy	H21fy	H22fy	H23fy	H24fy	H25fy	総額														
	一般会計 (⑨、⑩)			900	2,497	270	30		3,697														
	特別会計 (電源・需給の別)								-														
	加速予算(成果普及費を含む)								-														
	総予算額 (⑨、⑩)			900	2,497	270	30		3,697														
	(委託)			900	2,497	270	30		3,697														
	(助成) : 助成率(1/2) (共同研究) : 負担率								-														
開発体制	経産省 担当原課	製造産業局非鉄金属課																					
	プロジェクトリーダー (開発責任者)	⑨-1	東北大学未来科学技術共同研究センター	教授	高橋研	⑨-3-1	東北大学未来科学技術共同研究センター	教授	高橋研	⑨-3-2	大阪大学大学院工学研究科	准教授	井藤幹夫	⑩-1A	名古屋工業大学大学院工学研究科	教授	小澤正邦	⑩-1B	東北大学未来科学技術共同研究センター	教授	宮本明	⑩-2	技術研究組合単層 CNT 融合新材料研究開発機構 プロジェクト本部長

	委託先	<p>⑨-1 帝人(株)、戸田工業(株)、トヨタ自動車(株)、(独)物質・材料研究機構、京都大学、倉敷芸術科学大学、千葉工業大学、東北大学 再委託先：(独)産業技術総合研究所、(財)電気磁気材料研究所 共同実施先：大同特殊鋼(株)、(株)本田技術研究所、日亜化学(株)</p> <p>⑨-3-1 (株)T&Tイノベーションズ、戸田工業(株)、秋田大学、京都大学、倉敷芸術科学大学、東北大学、広島大学 再委託先：(独)産業技術総合研究所、住友電気工業(株)</p> <p>⑨-3-2 日産自動車(株)、大阪大学、九州大学、千葉工業大学、長崎大学 共同実施先：大同特殊鋼(株)</p> <p>⑩-1A (株)アドマテックス、(株)ノリタケカンパニーリミテド、名古屋工業大学、 再委託先：共立マテリアル(株) 共同実施先：(株)キャタラー、トヨタ自動車(株)</p> <p>⑩-1B 第一稀元素化学工業(株)、(株)本田技術研究所、(株)ルネッサンス・エナジー・リサーチ、宮城県産業技術総合センター、熊本大学、東北大学、名古屋大学、北海道大学 再委託先：(独)産業技術総合研究所、八戸工業高等専門学校 共同実施先：トヨタ自動車(株)、(株)豊田中央研究所</p> <p>⑩-2 技術研究組合単層CNT融合新材料研究開発機構 加入機関：(株)アルバック、尾池工業(株)、(株)カネカ、大日本印刷(株)、東レ(株)、(独)産業技術総合研究所</p>
情勢変化への対応	<p>本プロジェクトでは、研究開発を実施する前に、レアメタル・レアアースの各元素についてリスク調査を行い、調査時点でリスクの高い国として取り組むべき重要な元素を選定し、研究開発の対象元素としている。この調査は、平成17年度、平成18年度、平成20年度、平成22年度と実施している。平成22年7月以降大きな問題となったレアアースの供給不安の顕在化に対し、国としてこの問題を先取りした研究開発の動きを取っており、研究成果が出ていること、研究成果の上市化予定等を示すことができとこと一定の評価が得られている。</p> <p>平成19年度からインジウム、ジスプロシウム、タングステンの3鉱種について実施しており、平成20年度の鉱種のリスク調査結果を受けて、平成21年度から、新たに白金族、セリウム、テルビウム・ユウロピウムの3鉱種について実施している。</p> <p>平成21年度以降、レアアース等に対する供給不安が現実のものとなってきたことから、既に研究開発を開始している鉱種について緊急に対策を開始した。具体的には、平成21年度補正予算および平成23年度予算でジスプロシウム(ネオジム含む)を、平成22年度補正予算でセリウムおよびインジウムに対する研究開発を実施した。</p> <p>また、平成22年度には鉱種のリスク調査を実施し直近のリスクの把握を行い、平成23年度以降の研究開発のための準備を行った。</p>	
評価に関する事項	<p>事前評価</p> <p>中間評価</p> <p>事後評価</p>	<p>⑨-1： 未実施</p> <p>⑨-3-1、⑨-3-2： 平成23年度実施 担当部 電子・材料・ナノテクノロジー一部</p> <p>⑩-1A、⑩-1B、⑩-2： 平成22年度実施 担当部 電子・材料・ナノテクノロジー一部</p> <p>未実施</p> <p>平成24年度実施</p>

Ⅲ. 研究開発成果
について

⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

1. 事業全体の成果

目標	研究開発成果	達成度
(1) 窒化鉄系材料の開発 ・ 80%以上の Fe_{16}N_2 相からなる微粒子を作製し、高性能磁石化に資する基本特性を確認する。 ・ 磁石化に向けて、より保磁力を高める磁性粉末の開発指針を得る。	(1) 窒化鉄系材料の開発 ・ 間接合成法により 80%以上の高純度 α - Fe_{16}N_2 ナノ粒子粉末の合成に成功した。 ・ 第一原理計算による材料設計から、ある金属元素で一部の Fe サイトを置換した $\text{Fe}_{12}\text{M}_4\text{N}_2$ 材料では、永久磁石のポテンシャルを有することが分かった。	(1) 達成
(2) R-Fe-N系材料の開発 ・ モータ用磁石としての実用を考え、保磁力 20kOe 程度を目標とする。	(2) R-Fe-N系材料の開発 ・ SmFeN 粉末に Zn を添加し熱処理した等方性ボンド磁石で保磁力 20kOe 以上が得られた。	(2) 達成

2. 研究開発項目毎の成果

(1) 窒化鉄系材料の合成とその基礎特性把握

- ・ いくつかの直接合成法では、窒化したナノ粒子を生成することに成功し、部分的ではあるものの所望相である α "- Fe_{16}N_2 相を得ることに成功している。
- ・ 間接合成法では、独自に構築した鉄化合物原料合成技術と熱処理の技術の融合により、グラムスケールで生成率80%を超える高純度の α "- Fe_{16}N_2 ナノ粒子粉末の合成に成功した。これにより、本研究開発で掲げた当初目標値 (80%以上) を達成した。

(2) R-Fe-N系磁石の高性能化に向けた要素技術開発

- ・ 原料粉の微粉化は保磁力増加に効果がある。SFN 粉末を $0.53 \mu\text{m}$ まで微粉化することにより、保磁力が 0.91 MA/m (11.4 kOe) から 1.27 MA/m (16.0 kOe) まで増加した。
- ・ Zn を 5 wt% 添加し 450°C で熱処理した等方性ボンド磁石において、保磁力 1.6 MA/m (20 kOe) を超える保磁力が得られ、目標をクリアした。
- ・ 力場や電磁場などを組み合わせた複合場焼結技術を高度化し、難焼結粉末である Sm-Fe-N 磁石粉末への適用を行った。充填性や焼結性を検討し、粉末の磁石特性を生かした緻密な焼結体を作製できる技術を開発し、高性能な焼結磁石を作製するための焼結技術を達成した。その結果、焼結密度90%以上、最大エネルギー積 (BH)_{max} で 16.1 MG0e を有する等方性磁石を作製することができた。
- ・ 異方性粉末では、焼結による保磁力の低下が著しく、また焼結密度も80%程度となった。この保磁力はZn 処理することによって改良でき、熱処理条件の適正化によって焼結体の保磁力を元の粉末より高い 18 kOe まで向上させることができた。
- ・ 冷間圧縮せん断法により作製した等方性の Sm-Fe-N 磁石の最大エネルギー積は 8 MG0e 程度であったが、異方性の Sm-Fe-N 磁石は最大エネルギー積で 20 MG0e 以上の高性能な Sm-Fe-N 磁石であることがわかった。

(3) 新規磁石材料の高特性化に向けた指導原理獲得

- ・ 第一原理計算による材料設計から、ある金属元素 M1 あるいは M2 で一部の Fe サイトを置換した $\text{Fe}_{12}\text{M}_4\text{N}_2$ 材料では、Fe-III (4d) サイトを M1,2 で置換することにより α -Fe に匹敵する飽和磁気モーメントを維持しつつ、磁気異方性エネルギーが正の値を示し、永久磁石材料としてのポテンシャルを有していることが分かった。
- ・ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 粉をメカニカルミリングと窒化により試作し、それを磁場で配向させスパークプラズマ焼結 (SPS) 法を用いて低温焼結を行い、Zn との混合量、SPS 法のプロセス条件最適化によって、バルク材で約 24 kOe という高保磁力を達成した。高保磁力を示した試料の SEM-EDS、アトムプローブ組織解析の結果、結晶粒表面近傍に、Sm、Zn の濃化と Zn リッチ粒界相の形成が観察され、保磁力向上との関連が示唆された。
- ・ 合成した α "- Fe_{16}N_2 ナノ粒子粉末に対し、透過型電子顕微鏡観察および EDS、電子線回折を用いて詳細に分析した結果、 α "- Fe_{16}N_2 ナノ粒子は単結晶 α "- Fe_{16}N_2

コアの周囲に酸化鉄シェルの複合構造となっていることが分かった。

(4) モータの評価・解析

・市場より入手した主駆動モータを基準として、これをFe-N系磁石に置き換えた場合の特性をFEMにより算定した。その結果、高配向かつ高充填の理想的なFe-N系磁石を適用することで、無負荷誘起電圧波形における電圧振幅は従来のNd-Fe-B系磁石材料を適用した場合に比べ、1.6~1.7倍増大し、トルクは40%程度向上することが分かった。

・モータ構造において、表面磁石型構造および埋込磁石型構造における磁石の不可逆減磁を検討した結果、両構造において磁石の不可逆減磁を抑制する最適な構造があることを見出した。特に、Fe-N系磁石の場合は、分布巻で埋込磁石構造とした方が、トルクおよび減磁耐力の面で有利であることが明らかになった。

⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発/窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

1. 事業全体の成果

目標	研究開発成果	達成度
(1) 分散・表面修飾の基礎技術 ・分散・表面処理により全粒子のうち単粒子の割合が50%以上となることを目指す。	(1) 分散・表面修飾の基礎技術 ・ μm 程度の凝集粒径をもつ窒化鉄ナノ粒子の一部を1次粒子径相当の粒径まで分散安定化させることに成功した。	(1) 達成
(2) 大量合成技術 ・窒化鉄ナノ粒子を約10g/バッチで合成可能な技術の構築を目指す。	(2) 大量合成技術 ・大型炉の一部改造により10g/バッチの合成に成功した。	(2) 達成

2. 研究開発項目毎の成果

(1) 分散・表面修飾の基礎技術

・酸素および水分フリーの雰囲気下にて微小ビーズを用いることで、 μm 程度の凝集粒径をもつ窒化鉄ナノ粒子の一部を1次粒子径相当の粒径まで分散安定化させることに成功した。

・分散後プロセスとして、1次粒子状態で分散安定化した窒化鉄ナノ粒子を用い、非水系溶剤中で非水系ゾルゲル法を用いて非磁性被覆を行って、コア-シェル型の非磁性/窒化鉄ナノ粒子の合成を実施中である。また、原料段階のプロセスとして、非磁性材料で被覆した酸化鉄ナノ粒子を原料とし、可能な限り極薄の非磁性層で被覆された窒化鉄ナノ粒子を作製するプロセスの基礎検討も実施中である。今後、分散・表面処理のプロセス条件の最適化により、全粒子のうち単粒子の割合が50%以上とすることに成功した。

(2) 大量合成技術

・合成装置の一部改造を行い、10g/バッチの合成を可能とする大型炉を用いて2g/バッチで窒化鉄ナノ粒子の合成に成功した。その後、合成装置の更なる改造、ならびに、合成条件の最適化により10g/バッチの合成目標を達成した。

(3) バルク化技術

・材料粘性や固化時間を中心とした母材料のスクリーニングを行った。また、簡易的に磁場中で成型できる装置を試作し、窒化鉄ナノ粒子を磁場中でmmスケールにて固化できることを確認した。

・コアサイズ30nm程度のフェライト系ナノ粒子、シリカシェル厚2-3nmのコア-シェル構造ナノ粒子を用いて緻密化の検討を行った。焼成温度500°C、印加圧力1.2GPa、保持時間1時間の条件下で相対密度98.6%の焼結体が得られた。

・複合場焼結技術を用いて鉄系ナノ粒子を低温で焼結した。超硬金型に充填し、加圧力と充填密度の関係を調べたところ、1.3GPa程度で飽和することが明らかとなった。このときの相対密度は約60%であった。

・マグネタイト（酸化鉄）を用いて、数 $10\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ 程度の顆粒化を行った。この結果、充填時の飛散や金型クリアランスへの噛み込み等を起こすことなく成型可能な事を確認。成型圧 1.2GPa の油圧プレス成型において相対密度で 69% 到達を確認した。

(4) 評価・解析

・マイクロマグネティクス手法を用いて磁化反転プロセスの解析をした結果、単一の結晶粒径が単磁区結晶粒径よりも小さい条件であるにもかかわらず、磁壁幅と比較して大きな場合には、磁壁を生成するための磁化分布の内部自由度を考慮しなければならないことが分かった。

・局所磁化過程計測に有効となる、パルス磁石を付加した高機能・高分解能・磁気力顕微鏡の開発のために、パルス磁場波形に対して、局所磁化過程計測時の信号雑音比向上に適した長い立ち下がり時間を実現できるコンデンサ電源ならびにパルス磁場コイルの仕様を明らかにし、特注のコンデンサ電源を開発・導入した。また、高磁場環境用スキャナに対し、予備実験の結果より、大きなパルス磁場に対するノイズ対策を

施した特注品を開発・導入した。

・透過型電子顕微鏡観察から、窒化鉄ナノ粒子の原料となる・ -Fe ナノ粒子は合成直後において凝集しているものの、結晶方位関係から1次粒子に相当するナノ粒子は単結晶であることが分かった。

⑨-3-2 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

1. 事業全体の成果

目標	研究開発成果	達成度
・独自の経験則に基づく磁石材料探索マップに従い、磁石を試作し代替磁石の可能性を見極める。	PLD 法による人工積層構造膜磁石の開発および急冷凝固法による新規磁石の探索において、当初の目標値を満足する代替磁石の開発に成功した。また複合磁石の新規成型プロセスを提案した。	達成

2. 研究開発項目毎の成果

Nd-Fe-B 代替磁石の創製を念頭に、積層型 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 人工積層磁石のナノ組織と室温で得られる磁気特性の関係をマイクロマグネティクス理論に基づく計算機シミュレーションで検討した。計算の結果、積層周期を 20nm まで減ずることにより、Nd-Fe-B 磁石の最大エネルギー積 $(BH)_{\text{max}}$ の限界値 (512 kJ/m^3) を越える $(BH)_{\text{max}}$ を達成できることが明らかになった。実用温度を念頭に置いた 200°C での磁気特性においても $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 積層磁石の $(BH)_{\text{max}}$ 値が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 積層磁石で到達可能な $(BH)_{\text{max}}$ 値を大きく上回り、 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 人工積層構造磁石は比較的高温で使用される Nd-Fe-B 系磁石を代替できる可能性を持った磁石であることが明らかとなった。実際に PLD (Pulsed Laser Deposition) 法を用いて積層周期 $10\text{-}20\text{nm}$ の $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ を 500 周期程度積層した人工積層構造 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石を作製した。その結果、 $150\sim 200^\circ\text{C}$ において、等方性 Nd-Fe-B 磁石に勝る特性を得ることに成功した。

急冷凝固法による新規磁石材料の研究開発では、Fe系合金、Co系合金、Mn系合金の探索を行った。その結果、本研究開発項目における目標である「新規磁石材料としては $B_r > 0.5\text{ T}$ を有するもの」を満たす新規磁石材料としては Sm-Zr-Fe系磁石、Fe-Ni系磁石、Co-Fe-Zr-B系磁石を、また「新規磁石材料としては $H_cj > 0.5\text{ MA/m}$ 以上を有するもの」を満たす新規磁石材料としては Sm-Fe系磁石、Co-Zr-Mo-B系磁石、Mn-Ga系磁石、MnBi系磁石をそれぞれ見出すことに成功した。特に飽和磁化の高いFe-Ni磁石と保磁力の大きいSm-Fe系磁石は今後の研究によりNd-Fe-B磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できることが、またMnBi系磁石は高温特性が優れているため高温用に限定すればNd-Fe-B磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できることがわかった。

新規磁石創製を目指した組織制御プロセスおよび磁石化成型技術の開発を行った。SmCo₅の粉碎については、界面活性剤としてAOT（ジ(2-エチルヘキシル)スルホコハク酸ナトリウム）を用いたヘキサン中での湿式ボールミルが有効であることが分かった。Feとの複合化では相互作用が不十分であるものの、8 wt%Fe程度までは保磁力が比較的維持できており、残留磁化も11%程度の向上が見られた。分子軌道法を用いた計算では、Sm₂Fe₁₇CN₂およびFe₁₆C₂が構造安定性が高く、高温仕様磁性材料に適している可能性が示唆された。また、難焼結性のSm₂Fe₁₇N₃やSmCo₅ハード磁性相では、FeやCoのソフト相複合化により、焼結時の緻密化を促進させることに成功した。これはソフト相が結合材の役割を果たしていることによると考えられ、複合磁石の焼結法として有効であることが期待される。

PLD（Pulsed Laser Deposition）法あるいは急冷凝固法で試作された5種類の新規磁石材料について、主に透過電子顕微鏡（TEM）を用いた詳細な構造解析および組成分析を行った。急冷凝固FeNi合金磁石では、コラム状FeNi結晶の集合組織が形成されており、各コラム内はいずれもfcc格子点をFe原子とNi原子がランダムに占めたほぼ完全な不規則状態であった。その他急冷凝固Co-Zr系合金磁石、急冷凝固Mn-Bi系合金磁石などについても微細組織と磁気特性の関係について明らかにした。

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

（テーマ全体の目標達成度：◎目標達成）

(1)セリウム使用量を低減した微粒子触媒材の開発

OSCを担うセリウム等とジルコニア（一部セリウムを含む）担体との複合形態において、セリウム成分を表面にナノレベルで濃化する（コアシェル型）コンセプトによる新材料の原理を確立した。微粒子触媒材のラポレベル合成技術、OSC性能、その安定性を検討し、製造方法を開発した。また、セリウム不使用材を検討した。

(2)セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能（OSC）材の開発

セリウム低減を図った複合微粒子の構造とOSCの相関を明確化し、性能を把握したところ、セリウム利用率80%以上を達成した。実用材料として最適化した開発技術に向け、具体的な触媒材でセリウム30%以上を低減した試作品を提示した。白金を担持したOSC材を対象に、触媒化にとって必要な触媒活性データを取得、その基本的特性を評価し、白金添加による高性能保持の現象を把握した。

(3)ガソリン車排ガス浄化触媒の開発

開発した材料および新OSC材を用いて、30%以上を低減した触媒を調製し、排ガス浄化用触媒の物性の観点から評価を行い、その性能評価と改善、大量製造上の問題点を検討した。現状生産レベルの触媒と同等の製造条件で触媒調製を検討、最適な触媒組成物ならびに小型および大型ハニカム型触媒の試作を検討した。さらに実車コンバータ向け触媒部品試作とその実車搭載エンジンによる法定モード試験を行いその基準をクリアした。

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

（テーマ全体の目標達成度：◎目標達成）

理論計算で裏付けられた酸化セリウム（CeO₂、以下セリアと表記）の優れた酸素吸蔵能と貴金属触媒安定化機能の原理に基づき、セリアのもつポテンシャルを最大限に引き出した新材料の開発、そして現状セリアと同等機能を有する代替材料の開発を行った。具体的な技術項目として、①理論シミュレーションによる材料設計指針、②形態制御による高性能化、③非セリア系材料開発、④サンプル性能評価、⑤開発材料の量産化の5つの項目について研究を推進した。開発した材料は、各研究室での予備評価、模擬ガスによる単体評価、実車での性能評価の3段階の評価により、選抜を行った。産総研における単体評価は156サンプルにのぼる。

	<p>その結果、単体評価からはドーブ材による CeO₂ 改良材において低温域での NO_x 浄化活性に効果があることを確認した。さらに、非 CeO₂ 材であるペロブスカイト系でも同様に低温域での NO_x 浄化活性に効果があることを確認した。さらに、実車評価の結果からは、本プロジェクトの成果として見出された各種のプロモーターをセリアに添加した WC-04、WC-07 および WC-08 が CeO₂ を 30%減らしているにも拘らず基準触媒に同等以上あるいは近い性能を持つことが確認された。さらなる低温浄化活性、A/F 変動タフネス、SV タフネスの改善、および熱以外の耐久劣化課題を確認・克服すれば基準触媒を超える触媒となる可能性があり、本プロジェクトにおける提案材料が目標としたセリア 30%削減技術の方向性を示すものであることを証明した。さらに、今回は実車評価まで至っていないが、ペロブスカイト材料でも十分に高い NO_x 浄化活性を単体評価で確認しており、実車で触媒活性にも期待が持てる。短期間の開発ながら、事業目的である (1) 新材料・代替材料の開発、(2) 新規材料に最適な大量合成技術の開発、(3) 自動車実排ガステストによる耐久性評価、(4) セリア使用量を 30%以上削減する技術の確立を実施し、さらに実車評価までの結果を踏まえて目標を実現しうる複数の候補材料を見出すことができ、十分にプロジェクト目標を達成した。</p> <p>⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発 (テーマ全体の目標達成度：◎目標達成)</p> <p>(1) 高品質グラフェン合成技術の開発 最適プラズマ CVD 技術の確立、プラズマ源の探索、銅箔の表面特性向上、CVD 合成後のグラフェンへの吸着ドーピングによる低抵抗化などにより、目標のシート抵抗 500Ω/sq 以下で透過率 87%以上のグラフェンを達成。</p> <p>(2) ロール to ロール大量合成技術の開発 幅 600mm、連続合成速度 0.6m/分のロール to ロール合成技術を実証した。さらに基板表面前処理・グラフェン合成・後処理機能を有するマイクロ波表面波プラズマ CVD ロール to ロール成膜装置を開発、グラフェン合成に成功し、目標を達成。</p> <p>(3) 透明フィルムの製造技術の開発 最適なパターン形成のためのレーザー加工条件探索、レーザーを使用したグラフェンの転写パターンニング、グラフェンの剥離・転写、グラフェン膜の液相処理での除去技術等の開発に取り組み、目標である線幅 0.3mm のグラフェン膜のパターンニングを達成した。さらに PET フィルムへのロール to ロール連続転写法の開発に取り組み、目標である 300mm 幅、長さ 5m の連続転写を達成。</p> <p>(4) 透明導電性フィルムの性能評価 グラフェン透明導電性フィルムの性能に関し、抵抗膜式タッチパネルに要求される電氣的・光学的特性、耐環境性、耐摺動特性、信頼性について評価を行った。さらにグラフェン透明電極を利用した抵抗膜式タッチパネルを試作。b*値 4、ヘイズ 3%、シート抵抗リニアリティ ±1.5%を確認し、目標を達成。</p> <table border="1" data-bbox="360 1489 1441 1626"> <tr> <td>投稿論文</td> <td>「査読付き」 42 件、「その他」 5 件</td> </tr> <tr> <td>特許</td> <td>「出願済」 14 件（うち国際出願 0 件）</td> </tr> <tr> <td>その他の外部発表 (プレス発表数)</td> <td>187 件</td> </tr> </table>	投稿論文	「査読付き」 42 件、「その他」 5 件	特許	「出願済」 14 件（うち国際出願 0 件）	その他の外部発表 (プレス発表数)	187 件
投稿論文	「査読付き」 42 件、「その他」 5 件						
特許	「出願済」 14 件（うち国際出願 0 件）						
その他の外部発表 (プレス発表数)	187 件						
IV. 実用化見通しについて	<p>⑨-1 Nd-Fe-B 系磁石を代替する新規永久磁石の研究 窒化鉄系ナノ粒子材料については、単相合成技術を当初計画より数年前倒しで達成できている。数年内で数十グラム/日程度の合成技術を得る。また、永久磁石の応用用途別に必要となる高充填集合体形成技術に関して 5~7 年内での確立を目指し、バルク体形成技術の進捗を踏まえつつ、実用化検討を通して最終的に 10 年程度での実用化を考えている。一方、R-Fe-N 系磁石については、本研究機関終了後も高飽和磁束密度化を目指した高充填化プロセス技術の構築を継続して行い 5 年内に現行の Nd-Fe-N ボンド磁石に匹敵するプロトタイプの試作が可能な技術を構築する。その後、耐食性や強度特性などの検討を通して最終的に 8~10 年内の実用化の判断をする。</p>						

⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

2013年度までに~kg/B級の合成技術指針を獲得し、2015年度には高配向・高充填化指針の獲得と数mm~10mmのバルク化技術の構築を図る。また、2015年度からは、電気メーカー・自動車メーカー等のユーザ企業を交え、窒化鉄材料のポテンシャルを最大限発揮できるモータ設計検討に入り早期の実用化を目指す。

⑨-3-2 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

等方性Nd-Fe-B/ α -Feナノコンポジット厚膜磁石については、多極着磁の容易性から、小型高トルクの小型モータへの応用が可能である。150°C程度で使用する設計では、研究で創製したSmCo₅/ α -Fe厚膜磁石の残留磁化が、Nd-Fe-B/ α -Fe厚膜磁石の残留磁化を上回るため、SmCo₅/ α -Fe厚膜磁石に優位性がある。また、昇温した基板の上に堆積させたSmCo₅はその磁化容易軸が面内に配向ことが知られている。その技術を本研究のSmCo₅/ α -Fe厚膜磁石に適用すれば、残留磁化をさらに増加させることが可能であり、室温においてもSmCo₅/ α -Fe厚膜磁石に優位性が出る可能性もある。

急冷凝固法により探索・開発した新規磁石では、飽和磁化の高いFe-Ni磁石、保磁力の大きいSm-Fe系磁石が得られており、これらは今後も研究を続けていくことにより、Nd-Fe-B磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できる。また、MnBi系磁石では高温特性が優れているため、高温用に限定すればこれもNd-Fe-B磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できる。

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

微粒子材料製造技術やOSC触媒技術などの要素技術に関して、当初の計画通り目標が達成されており、またハニカム触媒の試作・性能評価についても、基準に達した性能が得られている。今後は、さらに実用的な触媒材料を完成に向け技術の高度化を目指した対応をしてゆく。開発計画に沿った製品開発フェーズに移行するに際しては、将来のガソリン車とその排ガス浄化用触媒の開発動向、さらには社会情勢の変化により需給や市場全体の技術展開が不確定な部分もある。材料の耐久性・信頼性の評価や改良、量産化のための生産技術、コスト面の検討、具体的な新規実用触媒に合わせた材料の提供など、当面は試作レベルの材料提供や開発情報収集等をしながら実用化への検討を進め、最終的には実用化に至る見通しであると考えている。

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

単体および実車評価結果から、WC-08が-30%CeO₂目標をクリアしうることを確認できた。今後、さらなる触媒としての低温活性やSVタフネスの向上、熱以外の耐久劣化課題を確認・克服することで十分に-30%CeO₂触媒を実現することは可能と言える。

WC-08以外にも、WC-04やWC-07も実車で高い触媒活性を確認できており、今後の改良に期待が持てる。さらに、今回実車評価まで至っていないが、ペロブスカイト材料でも十分に高いNO_x浄化活性を単体評価で確認しており、実車で触媒活性にも期待が持てる。

これらのセリア削減触媒、100%セリア削減非セリア系触媒に関する成果をもとに、今後さらに社内における実用化におけるさらなる性能向上と社内における耐久性基準のクリアを進める。量産生技性やコスト見通しもあるので、18M(2017年秋)以降に実用化出来るよう材料技術の改良や量産触媒への組み込みを検討する計画である。

	<p>⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発</p> <p>本研究では、高品質グラフェンの合成技術開発に関して当初の目標を大幅にクリアするレベルを達成しており、ITO代替グラフェン透明導電膜の可能性を実証した。そこで委託事業後の研究開発により今後主流となる高スペックの静電容量型タッチパネルも視野に、さらなる低抵抗化、および生産技術高度化・量産化ステージの転写技術開発などを経て、実用化を目指す。尾池工業(株)は抵抗膜式タッチパネル向け透明導電膜の実用化に引き続き、今後は静電容量方式タッチパネル、及び優れた屈曲性を生かしたタッチセンサー等がグラフェン実用化の第1候補となると見込んでいる。(株)カネカはさらに高スペックが要求される有機太陽電池、有機LED向けの透明導電膜としての利用を目指すと同時に、本研究で開発した熱処理法による高品質グラファイトフィルムの開発を進めエレクトロニクス分野への適用を図る。また、本研究の成果をもとにグラフェンの生産技術とフィルム加工技術、印刷技術との融合を図り、東レ(株)はフレキシブル透明電極、大日本印刷(株)は静電容量式タッチパネル用グラフェン透明フィルムなど、競争力の高い透明フィルム製品開発を行い、事業化を目指す。(株)アルバックは本研究で得られた知見を元にグラフェン合成装置の高性能化を目指す。</p>		
<p>V. 基本計画に関する事項</p>	<p>作成時期</p> <p>変更履歴</p>	<p>平成24年3月 作成</p> <p>平成20年3月 制定</p> <p>平成20年7月 改訂</p> <p>平成21年3月 改訂</p> <p>平成21年12月 改訂</p> <p>平成22年3月 改訂</p> <p>平成22年6月 改訂</p> <p>平成22年12月 改訂</p> <p>平成23年7月 改訂</p> <p>平成24年3月 改訂</p> <p>平成24年11月 改訂</p>	<p>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」を修正</p> <p>新鉱種追加により修正</p> <p>研究開発項目⑥～⑧の委託者決定に伴う詳細目標と事業実施内容の確定による修正と「明日の安心と成長のための緊急経済対策(平成21年度補正予算(第2号))」に係る研究開発項目⑨の追加</p> <p>研究開発項目⑦-2目標の細分化に伴い改訂</p> <p>採択条件等反映のため、研究開発項目⑨-1および⑨-2の最終目標等を修正</p> <p>「円高・デフレ対応のための緊急総合経済対策(平成22年度補正予算(第1号))」に係る研究開発項目⑩の追加</p> <p>研究開発項目⑨-1の後続テーマとして研究開発項目⑨-3を追加</p> <p>希少金属代替・削減技術実用化開発助成を追加</p> <p>研究開発項目⑨-3の実施期間の変更、事後評価時期の変更、達成目標の変更、中間評価の削除</p>

用語集

⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

用語	説明
飽和磁化	強磁性物質を磁界中に置いて磁界を増加させていくとある磁界以上で磁化が一定となる。この磁化を飽和磁化という。温度の上昇とともに、飽和磁化は減少することが知られている。また、飽和磁化は材料固有の磁気物性値であり、材料が決まると一意に飽和磁化は決まる。
結晶磁気異方性エネルギー一定数	磁化しやすい結晶軸方向に磁化させるエネルギーと磁化しにくい結晶軸方向に磁化させるエネルギーの差。磁石特性のひとつである保磁力と関連し、この定数が大きければ大きいほど保磁力を大きくすることが可能となる。また、結晶磁気異方性定数は材料固有の磁気物性値であり、材料が決まると一意に結晶磁気異方性定数は決まる。
α'' (アルファ・ダブルプライム) 型	体心立方格子(α 型)をなす純鉄の結晶構造において、鉄原子間に窒素原子が入ることで鉄原子配列は歪んだ構造(窒素侵入型化合物)となる。さらに、この歪みを緩和するように体心立方格子8個分を単位構造とした結晶構造内に窒素原子が秩序を持って配置している構造を α'' 型と呼ぶ。このほか窒素が鉄原子間に無秩序に侵入し、配置する α' (アルファ・プライム) 型が存在する。
窒化鉄	鉄と窒素の化合物。窒素濃度によって相が異なり、11at.%の α'' -Fe ₁₆ N ₂ 、20at.%のFe ₄ N、25at.%のFe ₂₋₃ Nがある。
保磁力	磁化された磁性体を磁化されていない状態に戻すために必要な反対向きの外部磁場の強さをいう。抗磁力(こうじりょく)ともいう。
ナノ粒子	ナノメートル(nm)サイズの粒子。
直接合成法	原材料から一つのプロセスで他の相を経ないで所望の相を合成する方法を指す。
間接合成法	原材料から多段のプロセスで他の相を経ながら所望の相を合成する方法を指す。
等方性ボンド磁石	磁石の粉末(磁粉)をゴムやプラスチックに練り込んだ磁石で、磁粉の結晶軸(c 軸)の向きが3次元的にランダムな状態となっている。
最大エネルギー積	磁石が持つエネルギーの大きさのことであり、B-H 減磁曲線上の磁束密度 B と磁場 H の積に比例する。この BxH の最大値を最大エネルギー積(BH) _{max} (ビーエイチマックス)と呼び、SI 単位では kJ/m ³ 、CGS 単位では MGOe で表す。
Sm ₂ Fe ₁₇ N _x 化合物	Sm と Fe と N の化合物で、Sm ₂ Fe ₁₇ N ₃ の組成比のとき飽和磁化、結晶磁気異方性が最も高い。異方性磁界は Nd ₂ Fe ₁₄ B の 5 倍という高い値をもち、高保磁力を発現するポテンシャルを有するが、450°C程度で N が脱離し分解する。
異方性磁場(H _k)	結晶磁気異方性エネルギー一定数を飽和磁化で割った値に 2 をかけた値で、理論的な保磁力の最大値にあたる。実際の Sm-Fe-N 系材料の保磁力はその 1 ~ 2 割程度の値しか得られていない。
メタルボンド磁石	通常のボンド磁石は磁粉を樹脂(ポリマー)で結合させているが、この樹脂に金属(メタル)を用いたもの。バインダーに金属を用いることで耐熱温度が高くなる。
アモルファス金属	原子の配列が周期的な配列をせず液体状態の構造を持った金属。高強度、軟磁性、耐食性に優れる。

金属ガラス	アモルファス金属の一種で、ガラス転移を示す。アモルファス金属が薄帯などに限られるのに対し、バルクとしての形状を有する。
結晶化温度(T_x)	アモルファス金属を昇温していくと、原子配列が周期的になる結晶化が起きるが、そのときの温度をさす。
ガラス化転移温度(T_g)	金属ガラスを昇温していくと、原子配列がガラス状になる場合があるが、そのときの温度をさす。アモルファス金属では $T_x < T_g$ のためこの転移は見られないが、金属ガラスでは $T_x > T_g$ のため明瞭に観察される。
超流動	摩擦を受けずに液体が流れる現象
過冷却状態	物質は温度によって状態が変化するが、変化するべき温度以下でもその状態が変化しないでいる状態をさす。
アトマイズ法	溶融した金属に、高圧にしたガスや水をかけて細いノズルから噴出させて金属の微粉末を作製する方法
ピニングサイト	磁壁が移動するのに妨げになる周囲と磁氣的に異なる部分のこと。
クリープ変形	一定の温度、一定の応力を受けた材料が、ある時間を過ぎた後に生じる変形。金属では、クリープは通常、高温時にのみ生じる。
スプリングバック	材料をプレス加工したとき、圧力をかけた工具を離すと材料の変形が若干もとに戻る現象
laves 相	ラーベス(laves)相は、二種類の金属 A および B からできる合金で AB_2 の組成比をもち、原子半径比が約 1.2:1 である化合物
DSC(Differential Scanning Calorimetry)	示差走査熱量分析のこと。試料と基準物質を炉内に対称的において加熱(冷却)し、その時両者に流れる熱量の差を熱電対により測定する。比熱、結晶化温度等を測定できる。
アトムプローブ組織解析	試料表面に存在する合金中の構成元素を原子レベルの空間分解能で2次元マップとして表示する事が出来るばかりでなく、電界蒸発現象を用いて試料表面を一原子層ずつ蒸発させることにより、2次元マップを深さ方向に拡張していくことが出来る。このデータをコンピューターで蓄積し再構成することにより、合金中の原子の分布を3次元的に再構成することができる。
単磁区	強磁性材料をナノサイズまで小さくすると、磁壁を形成しないで磁化の方向が結晶磁気異方性磁場の方向に全て揃った状態。材料の飽和磁化や磁気異方性によって単磁区となる大きさは異なる。
磁壁	単磁区となるサイズより大きくなると現れる磁化状態の遷移領域。磁壁が存在すると磁性体の磁化は反転しやすくなり、保磁力は低下する。
マイクロマグネティクス	材料の形状や内部磁場を仮定し、材料を微細に区切った個々の箇所の磁化の向きや大きさの計算を通して材料全体の磁化状態を把握する計算手法
磁気力顕微鏡	磁化した探針を磁性材料の表面に近接させると、探針は漏れ磁場に応じて引力あるいは斥力を受ける。この探針を材料表面を走査させて磁氣的な引力・斥力の分布や磁区構造を観察する顕微鏡
コアシェル	ひとつの粒子(コア)の表面を、粒子とは異なる材質を用いてナノサイズの薄い層(シェル)で覆った複合構造
分散	粒子が溶媒中に凝集することなく均一に分布した状態
表面修飾	粒子表面を、粒子と異なる材質で覆う技術であり、コアシェルもそのひとつ
emu(イーエムユー)	CGS 電磁単位系における磁化の強さの単位。
Oe(エルステッド)	CGS 電磁単位系・ガウス単位系における磁場(磁界)の強さの単位。1 Oe は約 79.577 A/m
トランスアスクル	自動車のトランスミッションやデファランシャルギアなどを同じケースに組み込んだユニット
磁石トルク	固定子巻線が作る磁界と回転子磁石の間に働く吸引・反発力に由来するトルク
リラクタンストルク	固定子巻線が作る磁界と回転子突極の間に働く吸引力に由来するトルク
表面磁石型(SPM)モータ	永久磁石が回転子鉄心の表面に張り付けられた構造を有する永久磁石モータであり、磁石トルクのみで回転する

埋込磁石型(IPM)モータ	永久磁石が回転子鉄心に埋め込まれた構造を有する永久磁石モータであり、磁石トルクとリラクタンストルクを併用して回転する
集中巻	各相の巻線を各々1つの固定子極に巻く巻線方式
分布巻	各相の巻線を複数の固定子極(スロット)に分散して巻く巻線方式
d 軸, q 軸	永久磁石モータにおいて、磁石磁極中心線と一致する軸を d 軸, これと電気角で直角に交わる軸を q 軸と呼ぶ。
フラックスバリア	IPM モータにおいて、永久磁石の磁束が回転子鉄心内で短絡しないように設けられた空隙
有限要素法	解析対象を単純な式で表現できるまで小さな有限の要素に分割し、これらの連立方程式を解くことで、電磁界分布を計算する手法
リラクタンسネットワーク解析(RNA)	解析対象を複数の要素に分割して各々を磁気抵抗で表し、対象全体を1つの磁気回路網として計算する手法

⑨-3-2 Nd-F e-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

用語	説明
マイクロマグネティクス理論	外部から磁界が印加された際に、強磁性材料の持ちうる4つのエネルギーの和(交換エネルギー・磁気異方性エネルギー・静磁気エネルギー(反磁界によるエネルギー)・外部磁界によるエネルギー)が最低になるように、強磁性材料内部の3次元的な磁気モーメント配列を決定する考え方をマイクロマグネティクス理論と呼ぶ。
PLD	Pulsed Laser Depositonの頭文字を取った略語。レーザアブレーション法とも呼ばれる。一般的に紫外線波長の高エネルギーレーザをターゲットに照射し、ターゲットから解離・放出されるイオン・原子・分子・クラスター等を基板上に成膜させる手法。
温度係数	温度に依存する物性値を1°C(1K)あたり、どの程度変化するかを表す係数。永久磁石材料では一般的に残留磁化や保磁力の温度係数を議論する。
磁気異方性	強磁性物質は、その幾何学的な形状や結晶構造に起因して磁化されやすい方向(磁化容易方向)を有している。これを磁気異方性と言う。磁気異方性は物質が一旦磁化容易方向に磁化されるとその方向を向き続けようとする性質を示しているとも言える。
残留磁気分極	SI単位系を利用しヒステリシス曲線を描いた際、ループと縦軸($\mu_0 M$)との交点の事を残留磁気分極と呼ぶ。外部磁界とは関係ない状態(外部磁界なし)で、磁石が外部に発生する事ができる磁界の目安を示す。
ヒステリシス曲線	磁性材料に磁界を印加した際に、横軸を磁界、縦軸を磁化(もしくは磁束密度や磁気分極)として描いた曲線の事であり、本研究で取り扱う永久磁石材料においては、その特性評価の指標となる「保磁力」・「残留磁化」・ $(BH)_{max}$ 等の多くの情報を与える重要な曲線である。
角形比	M-HループもしくはB-Hループの第2象限である減磁曲線の膨らみの様子を表しており、飽和磁化と残留磁化の比で表現される。角形比の値が高いほど、大きな逆磁界まで磁化反転が生じにくい事を意味し、永久磁石の一般的な評価の指標である $(BH)_{max}$ 値も高くなる。
圧縮成形ポンド磁石	一般的にポンド磁石は、樹脂と磁性粉を混合して固めて作製され、その際、熱硬化樹脂(エポキシ系が多い)を用い、圧縮し成形された磁石が「圧縮成型ポンド磁石」と呼ばれる。
急冷凝固法	通常の鑄造法とは異なり、早い冷却速度(100°C/秒以上)で溶解凝固させる方法。急冷凝固法で作製した試料は非平衡相(準安定相やアモルファス相など)や微細な組織を有する。
アーク溶解	アーク放電で発生する多量の熱を用いて試料を溶解する方法。

高周波溶解	試料の周りに高周波電流を流して、試料を電磁誘導作用により非接触で自己発熱させて溶解する方法。
アモルファス	結晶は原子が周期的に並んだ構造と有するが、アモルファスは原子が周期的に並んだ構造を持たない。非晶質やガラスとも呼ばれる。
準安定相	準安定相は結晶質ではあるが、エネルギー的に一番安定な平衡相よりは少し高いエネルギー状態を有する結晶相を指す。
残留磁化	磁性材料に磁界を印加して着磁した(磁化した)後、試料が有する磁化を残留磁化と呼ぶ。
半金属	金属と非金属の中間の性質を示す物質で、ボロン(ほう素)やシリコン(ケイ素)などを指す。
D022構造	Strukturbericht分類名による結晶構造の表記であり、D022構造はAl ₃ Ti金属間化合物と同じ構造をもつものを指す。一般的な分類では正方晶(tetragonal)。
メカニカルミリング	材料を粉碎・混合する方法の一つ。容器内に試料及び粉碎用のボールを入れ、容器ごと回転あるいは振動させることにより、機械的に粉碎を行う。容器およびボールは一般にステンレスや硬質セラミックで作製されたものを使用する。
遊星型ボールミル	メカニカルミリングを行う装置の一つ。ターンテーブル上に粉碎用容器をセットし、その容器がさらに個別に回転可能となっている。容器の自転とターンテーブルの公転を利用し、容器内でボールと試料粉末が激しく衝突することにより効率的な粉碎が可能。
パルスB-Hカーブトレーサー	永久磁石の磁気特性の測定装置であるB-Hカーブトレーサのうち、パルス励磁により高磁場を発生させ、高い性能を持つ磁石の磁気特性を測定可能にしたもの。
クラスターモデル	物質の電子状態を計算する時のモデルの1つで、分子のように複数個の原子がブドウの房(クラスター)のように寄り集まったモデル。
分子軌道法	物質の電子状態を計算する方法の一つで、クラスターモデルを計算対象とし、境界での電子密度をゼロとする条件で、分子軌道関数を用いてエネルギー固有値を計算する方法。
共晶合金	2成分以上の金属を熔融状態から固相化した際、結晶レベルでは成分の金属がそれぞれ独立した混合物になっている状態の合金を表す。
最大エネルギー積	永久磁石の性能を表す指標の一つであり、(BH) _{max} の記号で表す。B-H減磁曲線上の点(H,B)におけるH(正とする)とBの積であるエネルギー積の最大値。磁気回路において動作点がこの最大エネルギー積の点にくるように設計したとき、磁石の体積を最も小さくできる。
飽和磁化	磁石に発生する磁化(物質の単位体積あたりの磁気モーメント。磁石としての強さ、どれだけ磁場に引き付けられるかを表す)は外部磁場の強さとともに増加するが、ある一定以上の強い磁場では、磁化が増えなくなる。この状態における磁化を飽和磁化という。
保磁力	磁化された磁性体を磁化されていない状態に戻すために必要な反対向きの外部磁場の強さを表す。
透過電子顕微鏡	観察試料に電子線を照射して試料を透過した電子を結像する顕微鏡で、試料の形状や結晶性、格子欠陥や結晶の配向方位などをサブナノスケールの分解能で観察できる。
ナノコンポジット	ナノメートルスケールで異種の物質を分散し複合化したもので、分散相の大きさがナノメートル次元(1~100nm程度)の複合体。
等方粒	成長速度の面方位依存性がないため、あらゆる方向に均一に成長した球状に近い単結晶粒。
コラム結晶	基板界面から一方向に向いて柱状に伸びた結晶粒。

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム使用量低減代替技術の開発

用語	説明
三元触媒	ガソリンエンジン排気中の3つの有害ガス、CO(一酸化炭素)、HC(炭化水素)、NO _x (窒素酸化物)を浄化する触媒。
空燃比(A/F)	空気(air)と燃料(fuel)の比。ガソリンと酸素(空気)を混合して高温の燃焼反応をおこさせるとき、H、C、O、N等の元素が反応して水と炭酸ガス等の無害ガスに転換するような、化学量論を満たす条件(理論空燃比)で、空燃比を調整すると、三元触媒が最高浄化率を示す。
酸素貯蔵能(OSC)	エンジン動作中には、エンジン出力のさまざまな条件にしたがって理論空燃比からずれるため、この調整を、酸素センサーを用いた電子制御によって行う。しかし、この制御はマクロでA/Fを完全に制御できないので、浄化率向上に限界がある。触媒自体によって、マイクロ空間で精密にこの制御を行うのが酸素貯蔵能(OSC)であり、エンジン排気処理設計の基本技術となっている。
セリアジルコニア(CZ)	1990年代以降に酸素貯蔵能(OSC)のため触媒成分として使われている組成物。酸化セリウム(セリア、CeO ₂)と酸化ジルコニウム(ジルコニア、ZrO ₂)の固溶体(結晶構造が同じで元素成分は混合している結晶性固体)であり、四半世紀にわたり適宜組成の最適化されて使用されてきたので広く知られ、セリアジルコニア(CZ)触媒と呼ばれることが多い。
ハニカム担体	触媒を保持する部品で、多孔性セラミックス焼結体もしくは金属により作製されている。
コート層	ハニカム担体上に数十ミクロン程度の触媒成分を含む多孔質層が形成されている状態をさす。触媒コート層は、担体であるアルミナ、バインダー、CZ系OSC材、貴金属、その他の助触媒により構成される混合物である。
コアシェル型粒子	中心の芯(コア)と外側に殻(シェル)を異なる成分を配置する構造の粒子。
昇温還元法(TPR)	水素などを含む還元性ガスを流通させながら一定速度で試料の温度を上昇させ、消費される水素等の還元ガス濃度を測定し、試料中あるいは表面の酸素の放出挙動を調べる方法。
格子酸素	気相ガスに対して固相表面での反応を促進する不均一触媒ではその表面での酸素等が反応に関与する。気相反応に対して関与する触媒の結晶格子内の酸素が格子酸素である。格子酸素はふつう表面の単位胞1つ程度にある酸素は想定される(セリア等)が、セリジルコニア系では格子内酸素のほとんどすべての酸素がOSCに利用される。
セリウム利用率	OSC触媒に含有するセリウムはその4価-3価イオンの酸化還元によって格子酸素を固体から気相に放出また吸蔵する。すべてのセリウムが利用されるのではなく、純粋なセリウム酸化物では表面単位胞程度の表層に限定される。セリアジルコニア(CZ)では理想的には100%に近い利用率を示し、すべてのセリウムイオンの完全に酸化還元(4価-3価)することが特徴である。しかし、実材料の使用条件ではすべてが利用されないこともあるので、利用率を指標とする。
シングルナノ粒子	10ナノメートル未満の大きさの粒子。
中和沈殿法	金属硝酸塩の水溶液にアンモニアなどのアルカリを添加する中和反応によって固体材料を合成する方法。
水熱合成	加圧下、100℃以上の加熱条件で物質を合成する方法。
ゾル	微粒子が媒体に分散している状態をさすが、一般には、水系や有機溶媒に微粒子を分散させた液状の固体液体混合物材料のこと。
ボールミリング	粒子を分散させた液体とボール(プラスチック、セラミックス製)を混合して転動する容器内で混合粉碎する操作。
貴金属	白金、ロジウム、パラジウムは、三元触媒に常用される金属であり、いずれも貴金属類に属する。

金属分散度	金属触媒の分散性を示す指標で、全金属原子数に対して表面に露出している原子割合(%)で示される。一酸化炭素の吸着現象を利用する測定が一般的である。
国内法定モード試験 (JC-08モード)	国土交通省では、ガソリン車、ディーゼル車等に各種の国内排気規制をおこなっており、自動車の使用時にそれらの規制値を満たす必要がある。現在、型式認定を受けるガソリン自動車についてはJC08モードで排気規制値(上記三元成分排出値の上限)を満たすことが義務付けられている。
触媒コンバーター	コート層をつけたハニカム触媒部品を収納し、金属ケースに一体化した部品で、1つの車に2個搭載していることが多い。
動的(変動)条件活性評価	エンジン動作によって空燃比は変動するため、実エンジン排気の浄化性能はA/F変動を模擬した動的条件で評価する必要がある。1秒程度の変動をかけた条件をモデルガスでつくり触媒評価を行う。
コールドスタート	自動車の発車時に、エンジン始動と同時にガソリンが供給されるが、ごく初期ではエンジン排気温度に対して触媒コンバータ温度は上昇していない。この間をコールドスタートと呼び、触媒機能が十分に発揮されないことが知られている。

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

用語	説明
100立方晶セリアナノ粒子	結晶系が立方晶のナノサイズの酸化セリウム粒子
111八面体セリアナノ粒子	結晶型が八面体型のナノサイズの酸化セリウム粒子
5連反応装置	5台並列で用いる反応装置
ab-initio法	第一原理法 計算法の一種
Aging	エージング処理
Ba-Sr-Co-Fe系	(BaSr)(CoFe) ₃ ペロブスカイト型酸化物
BaZrO ₃ :Ce微粒子	CeをドーブしたBaZrO ₃ ペロブスカイト型酸化物
CO変成用セリア	COシフト反应用酸化セリウム触媒
GC-MS	質量分析検出器付きガスクロマトグラフィー
GPR	ガウシアンプロセス回帰
IMR-MS	イオン分子反応によるソフトイオン化質量分析器
in-situ Raman	その場測定用ラマン分光器
JC08	JC08モード 燃費測定法のひとつ
OSC	酸素吸蔵能
RBFN	ラジアル基底関数 ガウス関数など
SVM	サポートベクターマシーン 回帰法の一種
THC	全炭化水素
Tiドーピング	チタンドーピング
TWC	Three Way Catalystの略 三元触媒のこと
TWC活性試験	三元触媒活性試験
UA-QCMD法	超高速化量子化学分子動力学法 計算法の一種
X線吸収分光法	엑스線吸収分光法
γ-アルミナ	ガンマ型酸化アルミニウム
アルミナ	酸化アルミニウム
エンジン制御負荷変動装置	エンジン台上試験を行う際に、実際の運転状態と同等のエンジン条件を再現させるための装置

界面エネルギー	界面近傍の内部に比べ過剰にある自由エネルギーのこと
界面活性剤	分子内に水になじみやすい部分(親水基)と、油になじみやすい部分(親油基・疎水基)を持つ物質の総称
含浸法	触媒調製法の一つ
貴金属触媒	触媒反応活性を持つのが貴金属である触媒のこと
貴金属担持	主に金属酸化物の粉末に微小貴金属を付着させること
キャラクタリゼーション	ある物質の機能や物性などを分析/解析することで特徴づけること
凝集	微粒子が何らかの作用で集まって粗大化すること
共沈法	触媒調製法の一つ
金属-セリア相互作用	金属と酸化セリウムが接触している界面に存在している何らかの化学的な影響のこと
グラフティング	触媒調製法の一つ
クリオゲル	透明ゲル
形態制御	形態の制御
ゲル-ゾル法	触媒調製法の一つ
高浸透性	高い浸透性能
固相反応法	触媒調製法の一つ
三元触媒活性試験	三元触媒(既出)の反応特性の測定のこと
自己再生能	外部要因がなくて本に戻る性質
実験計画法	要因を統計的に評価するための実験
実験融合計算化学	実験と融合した計算化学
シャシダイナモ	自動車で道路を走っている状態を実験室内で再現させて走らせることのできる装置
主成分分析	主たる要因を見出す統計的手法
浄化率	除去率
触媒化	実用触媒に仕立てること
助触媒	主触媒の補助的な添加物
シンタリング	凝集
水相合成	水溶液中で合成する手法
セリア	酸化セリウム
セリア代替材料	酸化セリウムを機能的に代替する材料
セリア代替酸化物	酸化セリウムを機能的に代替する酸化物
遷移金属酸化物	遷移金属を主成分とする触媒
ソフトイオン化質量分析装置	電子衝撃以外の方法で分子をイオン化する質量分析装置
ゾル	液体に微粒子が均質に分散している状態
ゾルゲル	一般的な意味でアルコキシド系ゾルを加熱などによりゲル状態とし、セラミックスなどを合成する化学操作、または核技術操作の一つ
ソルボサーマル反応	有機溶媒を用いる合成法
第一原理計算	実験データや経験パラメーターを使わないで理論計算をする方法の総称
第一原理手法	実験データや経験パラメーターを使わないで理論計算をする方法の総称
耐久	ある材料が外部からの物理的、化学的影響に対して、どれだけ長く抵抗できるか(劣化しない)を示す性能のこと
超臨界	臨界点よりも温度、圧力が高い状態
超臨界乾燥	超臨界流体で乾燥する手法
デラフォサイト	ある種の結晶の名前
凍結乾燥	凍結状態を利用する乾燥法
ナノグラフト	ナノサイズの粒子を析出させる触媒調製法
ナノコンポジット	ナノサイズの複合材料

ナノ粒子形状制御	ナノサイズレベルでの形の制御
熱天秤	温度による重量変化を記録する装置
ハニカム化	ハニカムに触媒を担持すること
パルス法	パルス状の変位を与えて応答を調べる手法
非線型回帰	ニューラルネットワークなどの線形ではない回帰手法
表面有機修飾ナノ粒子	表面を有機分子で修飾したナノサイズの粒子
ベシクル	面活性剤の分子層が2枚重なった集合体
ペロブスカイト	結晶の名前
ペロブスカイト型酸化物	ペロブスカイトの結晶型をした酸化物 基本は ABO_3
ペロブスカイト構造	ペロブスカイトの結晶型
マルチスケール・マルチフィジックス	様々なサイズの系における様々な物理現象
モーダル解析	振動解析
モーダル評価	固有振動数などの評価
ラングミュア・プロジェクト法	薄膜を形成する手法
粒径制御	粒径が揃った粒子を作ること
流通式超臨界反応装置	流体を流しながら超臨界条件で反応する装置

⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

用語	説明
タッチパネル	液晶パネルのような表示 装置とタッチパッドのような位置入力装置を組み合わせた電子部品であり、画面上の 表示を押すことで機器を操作する入力装置。
透明電極	ガラスのように透明でありながら、金属のように電気を通すもの。各種のディスプレイをはじめ、照明や太陽電池など光と電気を使うデバイスに広く使われている汎用電子材料。
ITO	酸化インジウム(In_2O_3)に数%の酸化スズ(SnO_2)を添加した化合物。英文名は、Indium Tin Oxide。液晶パネルや有機ELなどのFPD(フラット・パネル・ディスプレイ)向けの電極として多用されている。代表的透明電極の材料。
インジウム	原子番号49の元素。元素記号は In。銀白色の柔らかい金属。常温で安定な結晶構造は正方晶系。比重7.3、融点は $156.4^{\circ}C$ と低い。常温では空気中で安定である。塩基や水とは反応しないが、酸には溶ける。
グラフェン	1原子の厚さの sp^2 結合炭素原子のシート。炭素原子とその結合からできた蜂の巣のような六角形格子構造をとっている。
グラファイト	黒鉛のこと。六角板状結晶。構造は、亀の甲状の層状物質で層毎の面内は、強い共有結合(sp^2 的)で炭素間が繋がっているが、層と層の間は、弱いファンデルワールス力で結合している。それゆえ層状にはがれる。電子状態は、半金属的である。グラフェンシートが多数積み重なってできているもの。
炭素ナノ材料	ナノメートルスケールの炭素で構成された材料。フラーレン、カーボンナノチューブ、グラフェン、カーボンナノファイバー、カーボンナノホーン、カーボンナノコイル、カーボンナノウォールなどがある。
フラーレン	多数の炭素原子のみで構成される、中空な球状のクラスターの総称である。炭素原子の数が60個からなる C_{60} が代表的。
カーボンナノチューブ	炭素によって作られる六員環ネットワーク(グラフェンシート)が単層あるいは多層の同軸管状になった物質。CNTと記載されることも多い。

単層	グラフェンの場合、炭素原子一層のこと。2層以上と区別したい場合に用いる。
電子移動度	固体の物質中での電子の移動のしやすさを示す量であり、易動度とも書く。単に移動度という場合はキャリアの移動のしやすさを示す。半導体の場合、キャリアとは、電子および正孔のことである。
基盤研究	今後の多様な展開が想定される場合に用い、共通的使用される基礎となる重要な研究。
プラズマ	気体を構成する分子が電離し、陽イオンと電子に別れて自由に運動している状態をさす。
CVD	化学気相成長、化学気相蒸着または化学蒸着(CVD: Chemical Vapor Deposition)は、さまざまな物質の薄膜を形成する蒸着法の一つ。
塗布	薬剤などをぬりつけること。薄膜形成技術の一つ。
高分子利用技術	本研究の場合、高分子を出発原料として熱処理や化学反応を利用して薄膜を製作する技術をさす。
抵抗膜方式タッチパネル	対向する2枚の透明電極の1枚に電圧を印加し、操作した位置に応じた電圧が2枚目に発生する方式のタッチパネル。
静電容量方式タッチパネル	指先と導電膜との間での静電容量の変化を捉えて位置を検出する方式のタッチパネル。
ポリイミド	繰り返し単位にイミド結合を含む高分子の総称。共役構造を持つため、剛直で強固な分子構造を持ち、且つイミド結合が強い分子間力を持つためにすべての高分子中で最高レベルの高い熱的、機械的、化学的性質を持つ。
イミド	1級アミンまたはアンモニアにカルボニル基が2つ結合した構造。イミドは一般にアンモニアまたは1級アミンと酸ハロゲン化物または酸無水物から作られる。
層間剥離	グラファイトは層状物質で、層と層の間はファンデルワールス力で弱く結合されており、機械的に引きはがすことができ、その工程をさす。
エッチング	物質を化学的(ケミカル)あるいはレーザーなどで物理的に引きはがすこと。
エッチングレス	エッチングには様々な難しさや課題があるため、本来必要なエッチングをすることなく、目的対象物を得る方法。
転写	グラフェンは多くの場合、金属基板上で合成されるため、透明体を得るためには金属基板をエッチングし、目的とする別の基板に移行させる「転写」という工程が必要となる。
還元性気体	酸化物から酸素を除去することが可能な気体。水素がその代表的な気体の一つ。
低温還元	グラフェンの場合、高温で還元すると、還元直後に酸化されやすくなり、低温で還元することが必須となる。
高純度化	グラフェンは100%炭素で構成されることが理想であるが、実際には酸素や水酸基などが架橋していたり、合成時に紛れ込む基板物質や合成雰囲気物質が存在し、それらを除去して、100%炭素に近づけること。
ドーピング	本研究の場合、グラフェンに物質を添加して所望の物性を向上させること。
炭素源	グラフェンの構成元素である炭素を供給する物質。メタン、エチレン、アセチレンなど炭化水素系気体が多いが、黒鉛、高分子膜などの固体も使われる。
熱処理法	熱を使って物性を変化させる方法。グラフェン合成の場合には最高2800°Cや3000°Cという高温が使われる。
多層グラフェン	グラフェンよりも厚く、グラファイトよりも薄い薄膜。本研究では膜厚にして、主に1nm~3μm位の多数層グラフェンを指す。
プラズマ源	容量結合型プラズマ、電子サイクロトン共鳴プラズマ、ヘリコン波励起プラズマ、誘導結合型プラズマ、マイクロ波励起表面波プラズマ(SWP)、リモートプラズマ、インバータープラズマ、RFプラズマなどがあるが、本研究ではSWP~RFプラズマを利用した。
表面波プラズマ	真空容器内にスロットアンテナからマイクロ波を石英窓越しに照射して、石英窓近傍に生成するプラズマ。

リモートプラズマ	電子やイオンをカットラジカルのみを基板に到達させるため、低温合成あるいは高品質化が期待されるプラズマ。
インバータープラズマ	印加電圧の極性を10kHz程度で交番させながら発生させるプラズマ。
RFプラズマ	高周波数(13.56MHz)によって生成したプラズマ。
シート抵抗	一様な厚さを持つ薄い膜やフィルム状物質の電気抵抗を表す量の一つ。抵抗率と試料の長さの積を試料の断面積で除して得られる。単位は Ω / sq や Ω / \square と表記される。
低温合成	グラフェンの場合、1000°C以上で合成されることが多いが、1000°Cよりも低い温度で合成することを指す。本研究では300~650°Cを対象としている。
高分子焼成法	本研究の場合、黒鉛を出発材料とするのではなく、適切な高分子で薄膜を作り、それを2800°C以上の高温で熱処理することにより、多層グラフェン等所望の素材を作製する方法。
ロールtoロール	連続膜作製技術で円筒(ロール)に巻き付けた膜から引き出し、所望の処理を施した後、別の円筒に巻き取る方法で大量生産の代表的な方法。
ラマンスペクトル	物質に光を入射したとき、散乱された光の中に入射された光の波長と異なる波長の光が含まれる現象により得られる信号を波数とラマン散乱強度の関係で表した曲線。物質の同定に使われ、特定の波数における高い強度により、構造特性を知ることができる。
摺動特性	タッチパネルは指やポインターで押したり、こすったりして使用されるが、これと類似の動作に対する応答特性。前記類似の動作を機械的に繰り返して表面特性や物性に变化が現れるまでの回数からパネルの耐久性を評価する。
b* 値	表面色を表す尺度。Lab色空間(Lab color space)は補色空間の一種で、明度を意味する次元 L* と補色次元の a* および b* を持ち、それらで表される。たとえば、L* = 75、a* = 0においてはb* が大きいほど黄色みを帯びる。
ヘイズ	透明フィルム物性の一つで、不透明になる曇りの現象をいう。曇り度として%で表示される。数値が低いほど透明度が高い。ヘイズ(%) = $T_d / T_t \times 100$ (T_d : 拡散透過率 T_t : 全光線透過率)で算出。
シート抵抗リニアリティ	膜が均質であれば、距離と抵抗は直線関係を示すが、不均一である場合には、直線からの逸脱が起こる。理想直線に対してどの程度の範囲にあるかを表したものの。
基材	対象とする膜を支持する材料。
コーティング	膜を形成する材料を塗布すること。
機械的剥離法	グラフェンを支持体に接着し、機械的な力でグラフェン膜をはぎ取る方法。物理的剥離法も同様の方法で、化学的エッチング法に対峙する方法。
電気伝導度	物質の電気伝導のしやすさを表す物性値。
吸着ドーピング	グラフェンの表面や欠陥部に物理的吸着あるいは化学的吸着をすることで物質を導入すること。物理的蒸着は化学的蒸着に比べて結合力が弱く、経時変化しやすい。
ドーパント	導入物質。ドーピングされるもの。
PET	ポリエチレンテレフタレート。代表的な透明フィルムの材料。
屈曲性	折り曲げ特性。柔軟性を表す。曲率半径の異なる丸棒に巻き付けて評価する方法がある。
フレキシブルデバイス	柔軟性のある比較的単純な特定の機能を持った機器。
熱CVD法	高温により物質を化学的に蒸発させて薄膜を堆積させる方法。グラフェンの場合は1000°C程度の高温が使われている。
バッチ方式	一単位ごとにもものづくりをする方法をさす。連続法に対峙する用語。比較的シンプルな装置で構成され、生産性に欠ける場合が多い。
R2R	ロールTOロールの簡単表記。
コア技術	中心となる重要技術。
有機LED	有機化合物から成る発光ダイオード。

有機LED照明	有機LEDは表示装置に使われ始めているが、今後コストが低下していくと、壁や柱に施行して照明にするなど、多種多様な用途が生まれる。現在の蛍光灯の代替となる近未来の照明として注目されている。
ユビキタス元素	至る所に存在する元素。レアメタルは特定地域から生産されるのに対峙する用語。
導波モード	マイクロ波を伝送する方式。単一周波数のシングルモードと多数の周波数が共存するマルチモードがある。
光取り出し効率	発光量が外部に放射される割合。LED構造体において発光層内部表面では発光の一部が内部反射されて素子から放射されず戻ってきてしまう、そして発光層背面ベース金属材の表面で再度反射されるがまた発光層表面(内面)で一部が反射される、この事を幾度も繰り返し次第に熱へと変換され損失となる。
閉じ込め効果	nmオーダーの厚さの井戸層を、よりバンドギャップの大きい障壁層で挟むようにした構造で、電子や正孔を厚さ方向に閉じこめることが可能となる。
電子ペーパー	紙の長所とされる視認性や携帯性を保った表示媒体のうち、表示内容を電気的に書き換えることができるもの。

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

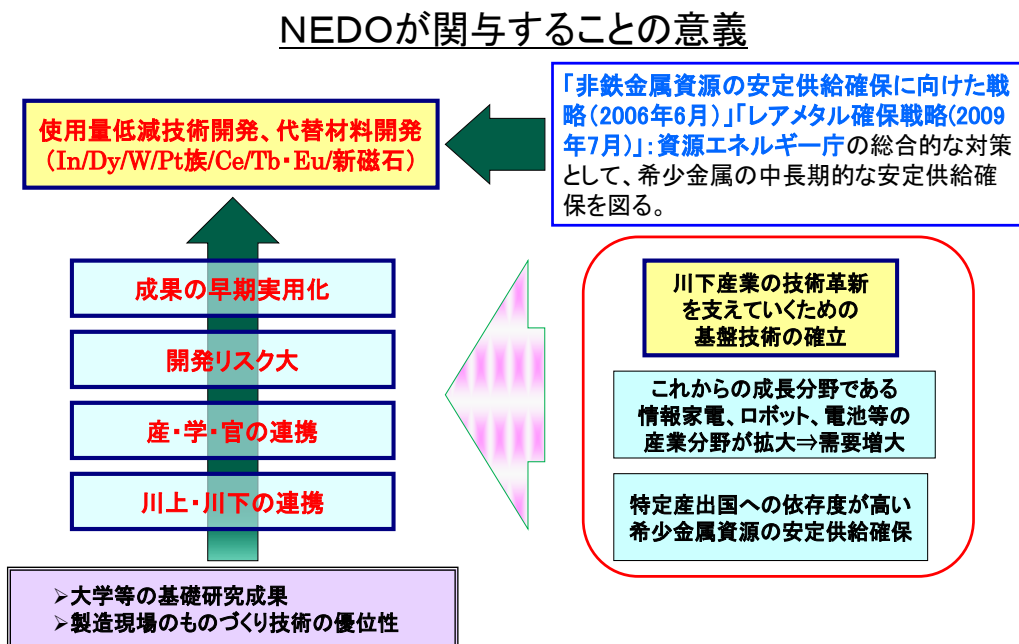
1.1 NEDO が関与することの意義

希少金属（レアメタル・レアアース）は、我が国が得意とするハイテク製品の製造に不可欠であり、今後も情報家電、電池、モータ等の産業分野において需要の拡大が見込まれている。一方、希少性、偏在性等から市場メカニズムが有効に機能せず、需要の逼迫等により我が国の経済に大きな影響を与えることが懸念されている。希少金属を取り巻く環境には、需給両面にわたる種々の課題や要請が存在し、今後より一層の総合的、戦略的な取り組みが必要であり、我が国としては「資源外交」「探鉱開発」「代替材料開発」「リサイクル」等による一体的な対策を進めているところである。中でもカントリーリスクが高く、かつ我が国の産業競争力の向上において重要な鉱種については、我が国の中・長期的な資源セキュリティの観点から、それらの依存度を下げる為、「代替・使用量低減技術の開発」と「成果の早期実用化」を推進する必要がある。

本研究開発は、上記のとおり社会的必要性が高い国家的課題であり、『文部科学省の元素戦略プロジェクトと連携し基礎から実用化までの間隙のない研究開発』が必要であり、又『産・学・官の連携』『川上・川下産業の垂直連携』等の推進により、供給不安に対応するための成果の早期実用化が求められている。

以上のような課題に対し、資源セキュリティに係る開発であること、開発リスクが非常に高いこと、高度な技術開発が求められており府省間の連携を取った国を上げての開発が必要であること等の観点からNEDOが関与することの意義は大きい。

NEDOが関与することの意義について図 I-1-1 に、府省連携とNEDOの関係を図 I-1-2 に示す。



政策的な位置付け・資源セキュリティ・技術開発の開発リスクの観点からNEDOが推進すべき研究開発プロジェクトである。

図 I-1-1 希少金属プロジェクトに NEDO が関与することの意義

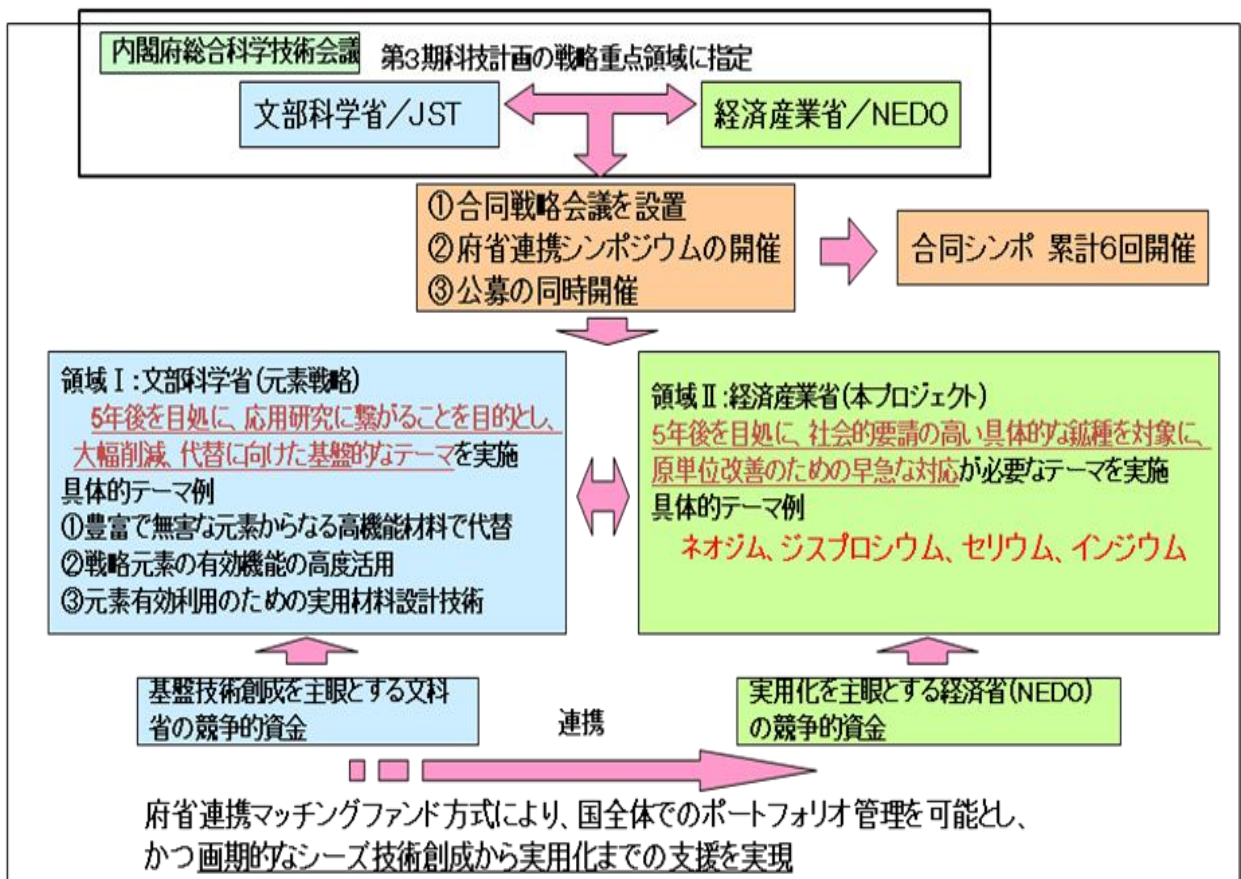


図 I-1-2 希少金属プロジェクトと戦略プロジェクト（府省連携）の関係

1.2 実施の効果（費用対効果）

本研究の対象とするネオジウム（Nd）、ジスプロシウム（Dy）、セリウム（Ce）およびインジウム（In）は、日本の基幹産業である自動車、電子・電気機器の開発にとって不可欠なものである。また、日本の資源セキュリティの確保、あるいはハイテク産業を支える高度部材の安定供給による国際競争力の向上の観点からも、これらの代替・低減技術の開発の波及効果は極めて大きい。表 I-1-1 に主要なレアメタルの上位産出国と日本の主要な輸入相手国と輸入比率を示す。

表 I-1-1 主要なレアメタルの上位産出国と日本の輸入相手国

研究No.	元素名	鉱石生産比率(%)			輸入相手国比率(%)		
①②⑩	インジウム (In)	中国 49	日本・カナダ 各10	韓国 17	韓国 63	中国 18	カナダ 9
③⑨	ジスプロシウム(Dy)	中国 97	インド 2	ブラジル 1	中国 91~100		
④⑤	タングステン (W)	中国 86	ロシア 5	豪州 1	FeW・WO ₃ 中国100	ATP中国94	
⑥	プラチナ (Pt)	南ア 80	ロシア 12	カナダ 4	南ア 80	ロシア 2	米国 5
⑥	パラジウム (Pd)	南ア 40	ロシア 41	米・加 6・8	南ア 45	ロシア 31	英国 11
⑥	ロジウム (Rh)	南ア 89	ロシア 9		南ア 70	米国 10	英国 9
⑦⑩	セリウム (Ce)	中国 97	インド 2	ブラジル 1	中国 87	エストニア 11	(酸化セリウム)
⑧	テルビウム (Tb)	中国 97	インド 2	ブラジル 1	中国 91~100		
⑧	ユウロピウム(Eu)	中国 97	インド 2	ブラジル 1	中国 91~100		
	ランタン (La)	中国 97	インド 2	ブラジル 1	中国 94	フランス 3	
⑨	ネオジウム(Nd)	中国 97	インド 2	ブラジル 1	中国 91~100		
	サマリウム (Sm)	中国 97	インド 2	ブラジル 1	中国 91~100		
	イットリウム (Y)	中国 99	インド 1		中国 95		
	ニッケル (Ni)	ロシア 19	豪州 11	カナダ 16	インドネシア48	ニューカレドニア 26	フィリピン 25
	クロム (Cr)	南ア 38	カザフ 18	インド 18	インド 67	南ア 20	
	コバルト (Co)	コンゴ 36	カナダ 13	豪州 12	フィンランド36	豪州 21	カナダ 16
	モリブデン (Mo)	米国 32	チリ 22	中国 25	FeMo中国 45	Mo塊中国 42	鉱石チリ 56
	マンガン (Mn)	南ア 20	豪州 19	中国 14	鉱石南ア 69	鉱石豪州 27	
	バナジウム (V)	南ア 39	中国 32	ロシア 27	FeV南ア 59	酸化物中国95	
	ニオブ (Nb)	ブラジル 89	カナダ 9		FeNbブラジル95	Nb塊米国92	
	アンチモン (Sb)	中国 81	ボリビア 5	南ア 4	Sb塊中国91	酸化物中国96	
	タンタル (Ta)	豪州 61	ブラジル 18	カナダ 5	フッ化物米国 68	ドイツ 32	
	チタン (Ti)	南ア 19	豪州 25	カナダ 13	ベトナム 25	豪州 39	インド・加 21
	リチウム (Li)	チリ 38	豪州 22	中国・アルゼンチン 12	チリ 79(炭酸Li)		
	ベリリウム (Be)	米国 41	中国 36		米国 76(その他製品)		
	ガリウム (Ga)	中国 32	ドイツ 19	カザフスタン 14	中国 39	米国 5	台湾 30
	ジルコニウム (Zr)	豪州 44	南ア 33	中国 14	鉱石豪州 63	南ア 28	ロシア 7

1.2.1 ネオジウム (Nd)

2008年のNd-Fe-B系焼結磁石の国内生産量は19,000~20,000t²⁾であり、ネオジウムの原料であるジジウム（ネオジウムとプラセオジウムの混合物）の使用量は5,000~5,300t²⁾であった。また、2011年のNd-Fe-B系焼結磁石の国内生産量は9,800~10,500t²⁾であり、ジジウム使用量は4,000~4,300t²⁾と2008年に比べ減少している。これは需要家の一部で希土類の相場高騰によるネオジウム磁石離れを引起したためであるが、ハイブリット車等の駆動用モータは、急な設計変更ができないため、この分野でのNd-Fe-B系焼結磁石使用量は堅調に推移する。2011年のジジウムの需

要金額は約11億ドル(単価266\$¹/kg)²⁾、892億円である。

本技術開発により、ネオジム磁石を100%削減可能となった場合、4,300t、892億円の削減効果があり、本プロジェクトによる削減効果は大きく、日本の産業分野へ貢献する重要な技術である。

1.2.2 ジスプロシウム (Dy)

2008年のネオジム系焼結磁石に使用されたジスプロシウムは750t²⁾であった。2011年の使用量予測は600t²⁾であり2008年比減量している。これは需要家の一部で希土類の相場高騰により、ジスプロシウム添加量を削減したネオジム磁石への代替やネオジム磁石離れを引起したためであるが、ハイブリット車等の駆動用モータは、急な設計変更ができないため、この分野でのジスプロシウム使用量は堅調に推移している。2011年のジスプロシウム需要金額は約13億ドル(単価2,123\$/kg)²⁾、994億円である。

本技術開発により100%削減可能となった場合、600ton、994億円の削減効果があり、本プロジェクトによる削減効果は大きく、日本の産業分野へ貢献する重要な技術である。

1.2.3 セリウム (Ce)

2009年実績でセリウムの生産量は全世界で約5万tであり、その大半が中国で生産されている。国内での需要量は年間11,350t²⁾であり、用途別では、研磨材向けが9,000t²⁾(79%)、次いで排ガス触媒向けが1,450t²⁾(13%)となっている。本研究開発により30%削減が可能になった場合、435tの削減効果がある。これは、2011年の酸化セリウム価格(99\$/kg)²⁾で計算すると、34億円の削減効果がある。また、これらの技術開発は、自動車産業(2009年の市場規模で約15兆円)の市場確保にも大きく寄与する。

1.2.4 インジウム (In)

2006年実績でインジウムの生産量は全世界で480tであり、その大半が中国で生産されている。この内、ITOターゲット用として430t¹⁾が使用されている。2011年の日本国内のITOターゲット使用量の実績値は929t²⁾であり、本研究開発により50%削減が可能になった場合、465tの削減効果がある。これは、2011年のインジウム地金相場価格(730\$/kg)²⁾では、265億円の削減効果がある。また、これらの技術開発は、液晶パネル(生産規模:43億9100万枚市場規模予測14兆円(2013年予測)³⁾)や太陽電池への応用や装置等の関連産業を含めて、日本の産業競争力の向上への貢献が期待される。

1.2.5 費用対効果

【定量的評価】

以下のように、定量効果として、約60倍の費用対効果が見込まれる(詳細は表I-1-2参照)。

本プロジェクトの総費用:約37億円

実用化時に見込まれる効果:2,185億円/年

¹ \$は米国ドル。為替レート:78円/\$で計算。以下同様。

表 I-1-2 算定根拠の明細

	金額 (億円)	低減見込量 (t/年)	相場価格 (\$/kg)	諸元 (為替レート：78円/\$で計算)
ネオジム磁石代替によるネオジム低減	892	4,300	266	$4,300\text{t/年} \times 266\$/\text{kg} \times 78\text{円}/\$$ =892億円
ネオジム磁石代替によるジスプロシウム低減	994	600	2,123	$600\text{t/年} \times 2,123\$/\text{kg} \times 78\text{円}/\$$ =994億円
排ガス触媒向けセリウム低減	34	435	99	$435\text{t/年} \times 99\$/\text{kg} \times 78\text{円}/\$$ =34億円
透明電極向けインジウム低減	265	465	730	$465\text{t/年} \times 730\$/\text{kg} \times 78\text{円}/\$$ =265億円
合計	2,185	-	-	-

定性効果として、本プロジェクトでターゲットとしているネオジム、ジスプロシウムは、ネオジム磁石としてHEV車、EV車、風力発電機に、また、セリウムは自動車に、インジウムはカラーテレビや携帯端末など、日本の産業競争力を支える製品に使われている。本開発によるレアメタルへの依存リスクの軽減は、本対象のみならず日本の産業競争力の向上に寄与する。

【参考文献】

- 1) 平成22年度成果報告書「希少資源代替材料開発に関する最新情報収集検討」NEDO
- 2) 2012 工業レアメタル128 ANNUAL REVIEW2012
- 3) 2008 液晶関連市場の現状と将来展望 富士キメラ総研

2. 事業の背景・目的・位置づけ

2.1 事業の背景

2.1.1 社会的背景

希少金属は、今後も情報家電、電池、モータ等の産業分野において需要の拡大が見込まれているが、その希少性・偏在性・代替困難性から市場メカニズムが有効に機能せず、その需給逼迫が経済成長の制約要因となると懸念されている。

2.1.2 技術的背景

近年、「コンピュータによる材料設計」や「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、従来は出来なかった「コンピュータの最適制御設計による候補元素系の探索」や「結晶粒界、界面の制御等マイクロ構造の制御」等の最先端技術を用いた希少金属の代替／使用量低減の技術開発が可能となりつつある。

2.2 事業の目的

希少金属は、我が国産業分野を支える高付加価値な部材の原料であり、近年その需要が拡大している。しかし、途上国における著しい需要の拡大や、そもそも他の金属と比較して、金属自体が希少であり、代替性も著しく低く、その偏在性ゆえに特定の産出国への依存度が高いこと等から、我が国の中長期的な安定供給確保に対する懸念が生じている。これに対する具体的な対策として、平成 18 年 6 月、資源エネルギー庁から報告された「非鉄金属資源の安定供給確保に向けた戦略」において、(1)探鉱開発の推進、(2)リサイクルの推進、(3)代替材料の開発、(4)備蓄が整理され、現在それぞれにおける具体的な対策が進められている（図 I-2-1「非鉄金属資源の安定供給確保に向けた戦略」参照）。平成 21 年 7 月には、希少金属をとりまく状況の変化にあわせ「レアメタル確保戦略」として継続的な政策が打たれている（図 I-2-2「レアメタル確保戦略」参照）。本研究開発は、この総合的な対策の一部である「(3)非鉄金属資源の代替材料及び使用量低減技術の確立」を目的としている。各課題を主に担当する機関は、下記の通りである。

- (1) 独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構、国際協力銀行
- (2) 独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構、(NEDO も事業として一部実施中)
- (3) 独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO)
- (4) 独立行政法人 石油天然ガス・金属鉱物資源機構

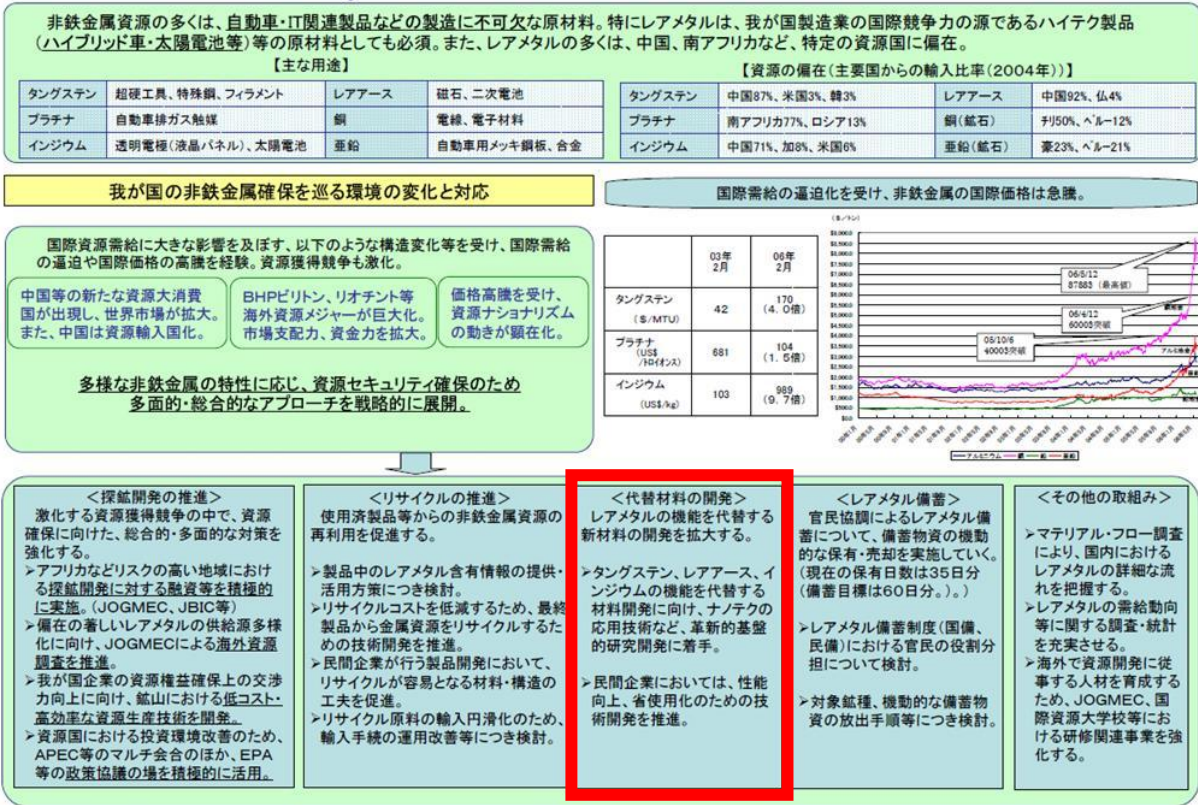


図 I-2-1 「非鉄金属資源の安定供給確保に向けた戦略」（資源エネルギー庁 平成 18 年 6 月）

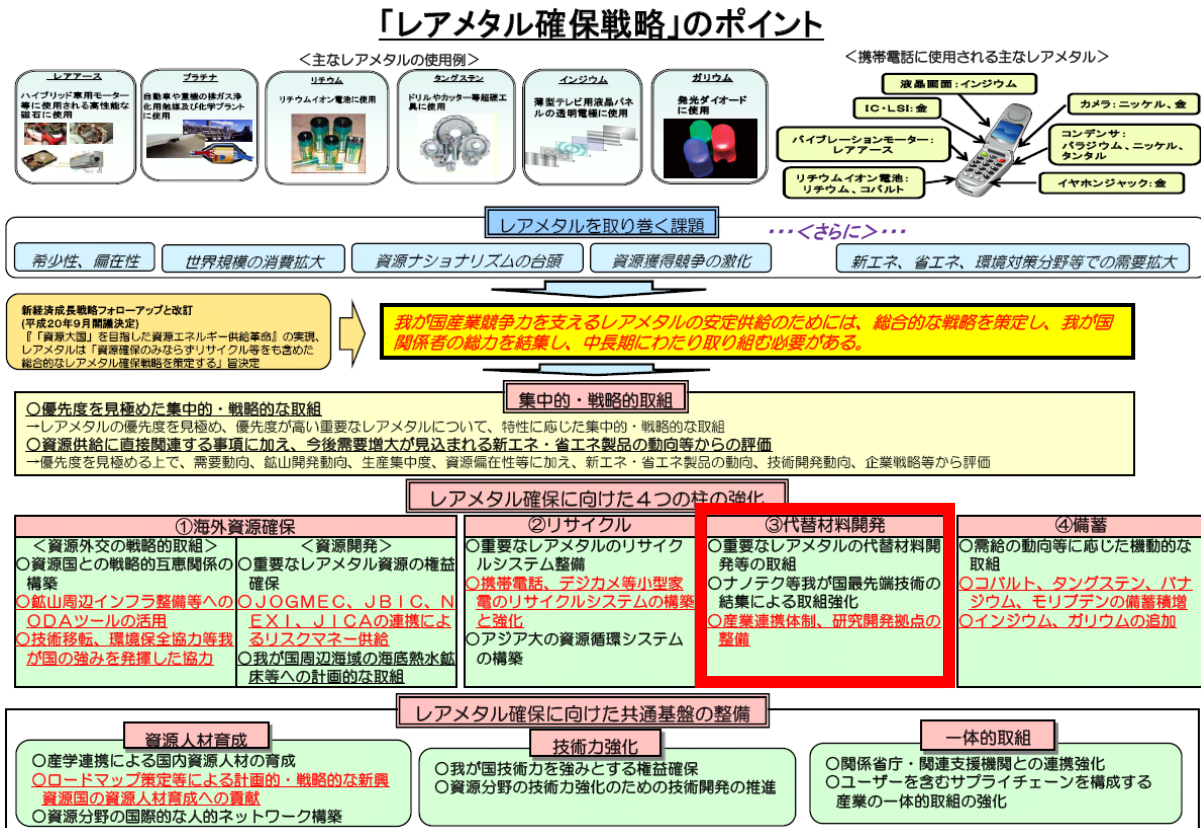


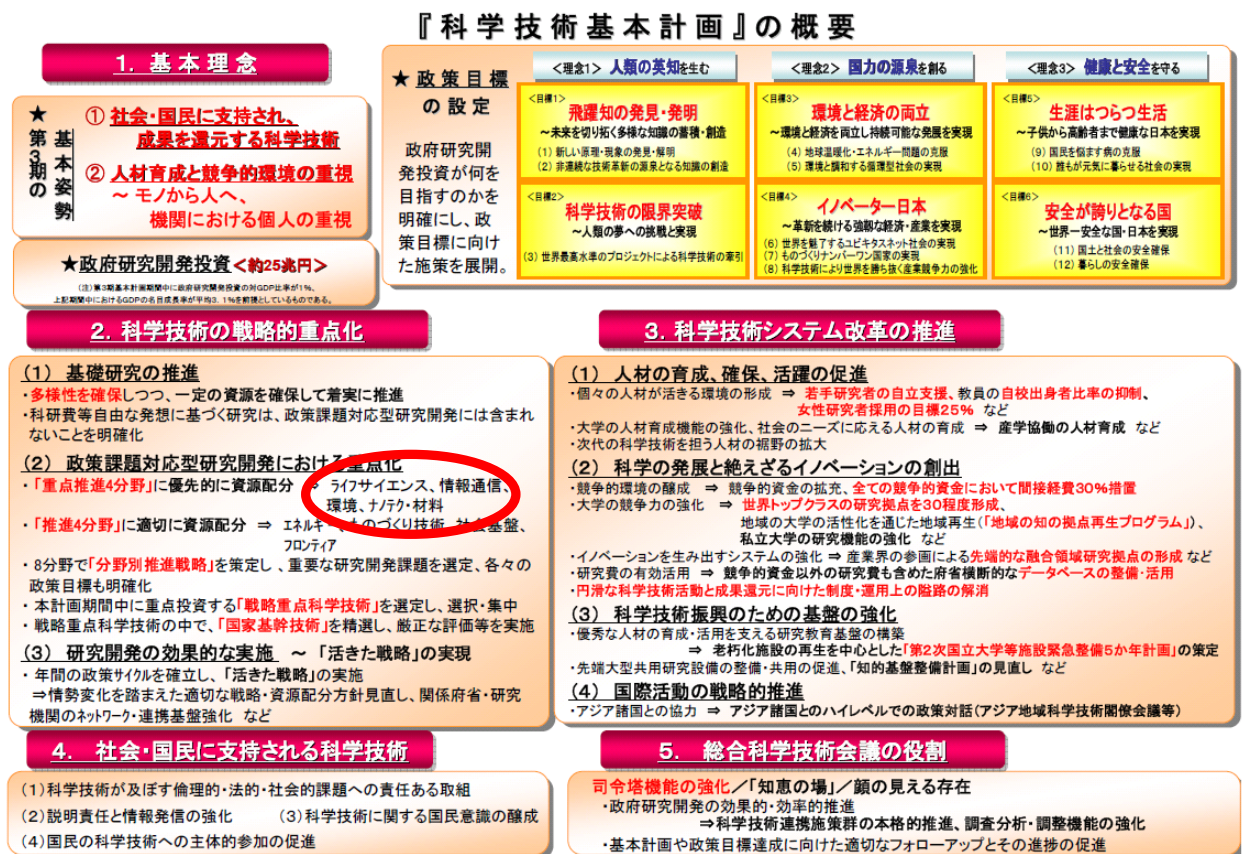
図 I-2-2 「レアメタル確保戦略」（資源エネルギー庁 平成 21 年 7 月）

2.3 事業の位置づけ

本研究開発は、政策的には、平成18年3月28日に閣議決定された「第3期科学技術基本計画」の中で、科学技術の戦略的重点化の重点推進4分野の「ナノテク・材料分野」「環境」（図I-2-3第3期科学技術基本計画参照、図I-2-4戦略重点科学技術参照）に位置づけられる。

本研究開発は、現在及び将来において我が国経済を牽引していく産業分野において、競争力を発揮し世界を勝ち抜いていくために、多様な連携（川上・川下産業の垂直連携、材料創製・加工との水平連携）による研究開発の推進により、当該市場のニーズに応える機能を実現する上で不可欠な高品質・高性能の部品・部材をタイムリーに提供し、又は提案することができる部材の基盤技術を確立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」（図I-2-5「ナノテク・部材イノベーションプログラム」参照）、及び環境・資源制約を克服し循環型経済システムを構築することを目的とした「環境安心イノベーションプログラム」（図I-2-6「環境安心イノベーションプログラム」参照）の一環として経済産業省の事業として実施されている。

また、文部科学省の元素戦略プロジェクトと府省連携し基礎から実用化までの間隙のない支援体制を確立して行うものであり、我が国の科学技術力の向上という観点からも極めて意義が高いものである。



図I-2-3「第3期科学技術基本計画の概要」（総合科学技術会議 平成18年3月）

選択と集中の戦略概念

- 社会、産業からの要請が強く、しかも『True Nano』や革新的材料でなければ解決が困難な課題
- ナノ領域特有の現象・特性を活かし、不連続な進歩や大きな産業応用により国際競争の優位を確保する課題
- 『True Nano』や革新的材料技術によるイノベーションの創出を加速し国際競争の優位を確保する推進基盤

戦略重点科学技術

- 『True Nano』や革新的材料で困難な社会的課題を解決する科学技術
 - ① クリーンなエネルギーの飛躍的なコスト削減を可能とする革新的材料技術
 - ② 資源問題解決の決定打となる希少資源・不足資源代替材料革新技術
 - ③ 生活の安全・安心を支える革新的ナノテクノロジー・材料技術
 - ④ イノベーション創生の中核となる革新的材料技術
- 『True Nano』で次世代のイノベーションを起こす科学技術
 - ⑤ デバイスの性能の限界を突破する先端のエレクトロニクス
 - ⑥ 超早期診断と低侵襲治療の実現と一体化を目指す先端のナノバイオ・医療技術
- 『True Nano』や革新的材料技術によるイノベーションの創出を加速する推進基盤
 - ⑦ ナノテクノロジーの社会受容のための研究開発
 - ⑧ イノベーション創出拠点におけるナノテクノロジー実用化の先導革新研究開発
 - ⑨ ナノ領域最先端計測・加工技術
 - ⑩ X線自由電子レーザーの開発・共用

図 I-2-4 「第3期科学技術基本計画 分野別推進戦略 ナノテクノロジー・材料分野」
(総合科学技術会議 平成18年3月)

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】

※各プロジェクト毎の予算額は21年度予算(20年度予算)【20年度補正予算】

- 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。

●一般計 ●特別会計



図 I-2-5 「ナノテク・部材イノベーションプログラム」

(経済産業省 平成 21 年度予算要求プロジェクト内訳)

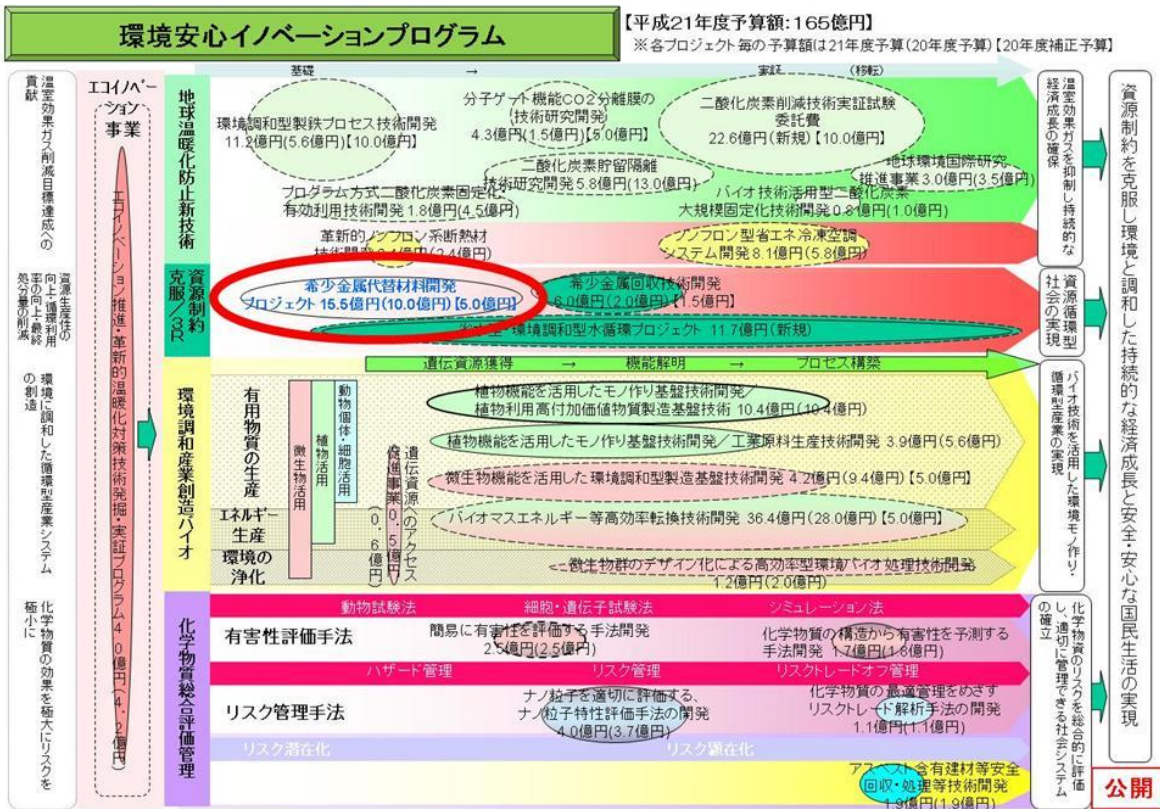


図 I-2-6 「環境安心イノベーションプログラム」
(経済産業省 平成 21 年度予算要求プロジェクト内訳)

2.4 海外の研究状況

2.4.1 米国の研究開発動向

米国からは米国エネルギー省より「Critical Materials Strategy (2011)」(図 I-2-7 参照)が発行されている。クリティカル物質を多量に使用し、今後消費の増加が見込まれる4分野向け(永久磁石/先進電池/太陽電池薄膜/蛍光物質)でのサプライチェーンの検証レアアース9鉱種を含む14鉱種のクリティカル物質の供給・需要・価格に関する時系列データを示し、重要鉱種を示した。

短期的に重要な鉱種としては、ジスプロシウム(Dy)、ネオジウム(Nd)、テルビウム(Tb)、イットリウム(Y)、ユウロピウム(Eu)、インジウム(In)などがあげられており、中期的にはジスプロシウム(Dy)、ネオジウム(Nd)、テルビウム(Tb)、イットリウム(Y)、ユウロピウム(Eu)などがあげられていた(図 I-2-8 参照)。平成22年度に実施した希少金属のリスク調査のシーズ研究調査からは米国では希少金属に関し明確に代替材料開発、使用量低減技術開発を目的とした研究開発は検索されなかった。

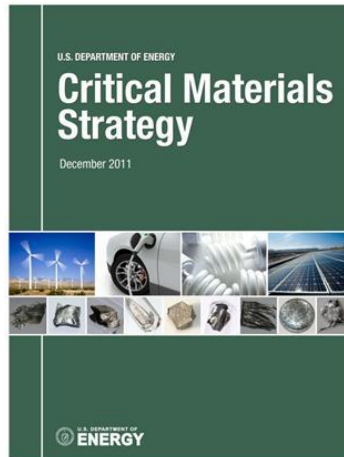


図 I-2-7 「Critical Materials Strategy 表紙 (DOE 2011)」

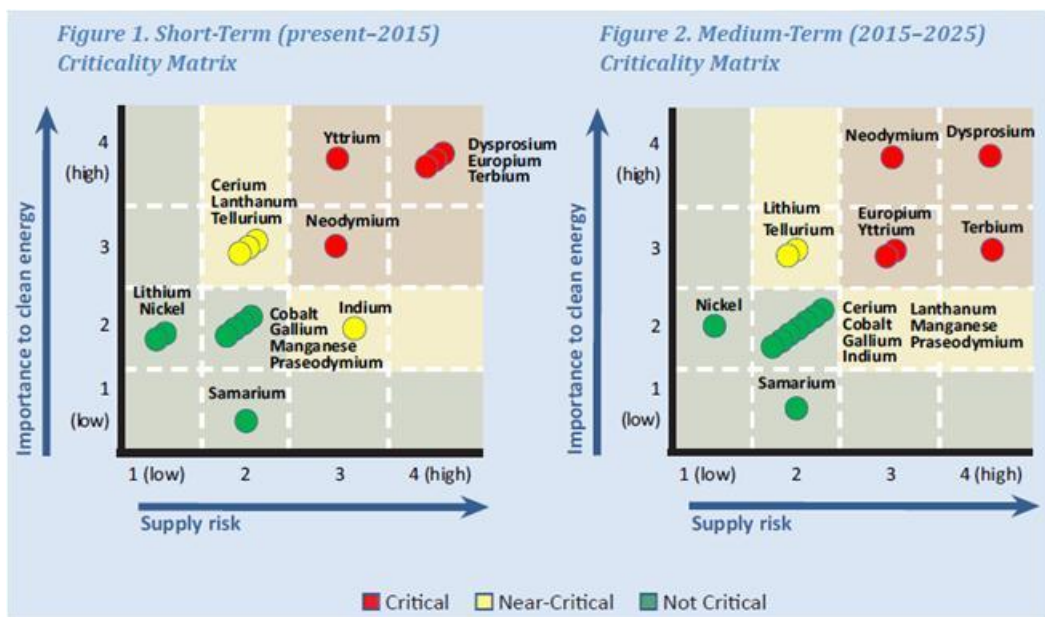


図 I-2-8 元素の産業に対する重要性と供給リスク

2.4.2 EUの研究開発動向

EUからは、「Critical raw materials for the EU (2010.2)」(図 I-2-9 参照)が発行されている。経済的重要度(消費シェア/経済的重要度/EUのGDP)と供給リスク(生産国リスク/代替可能性/リサイクル可能性)の観点から14の重要元素が示されている(図 I-2-10 参照)。重要な元素としては、アンチモン(Sb)、ベリリウム(Be)、コバルト(Co)、ホタル石、ガリウム(Ga)、ゲルマニウム(Ge)、グラファイト(C)、インジウム(In)、マグネシウム(Mg)、ニオブ(Nb)、白金族、レアアース、タンタル(Ta)、タングステン(W)を上げている。平成22年度に実施した希少金属のリスク調査のシーズ研究調査からはEUでは希少金属に関し明確に代替材料開発、使用量低減技術開発を目的とした研究開発は検索されなかった。

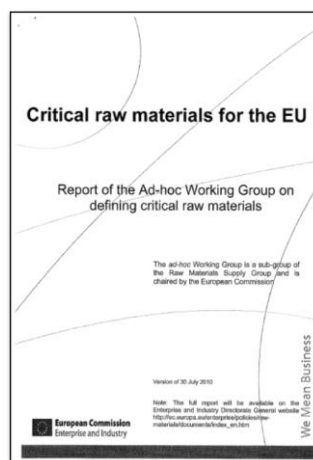


図 I-2-9 「Critical raw materials for the EU表紙 (EU 2010.2)」

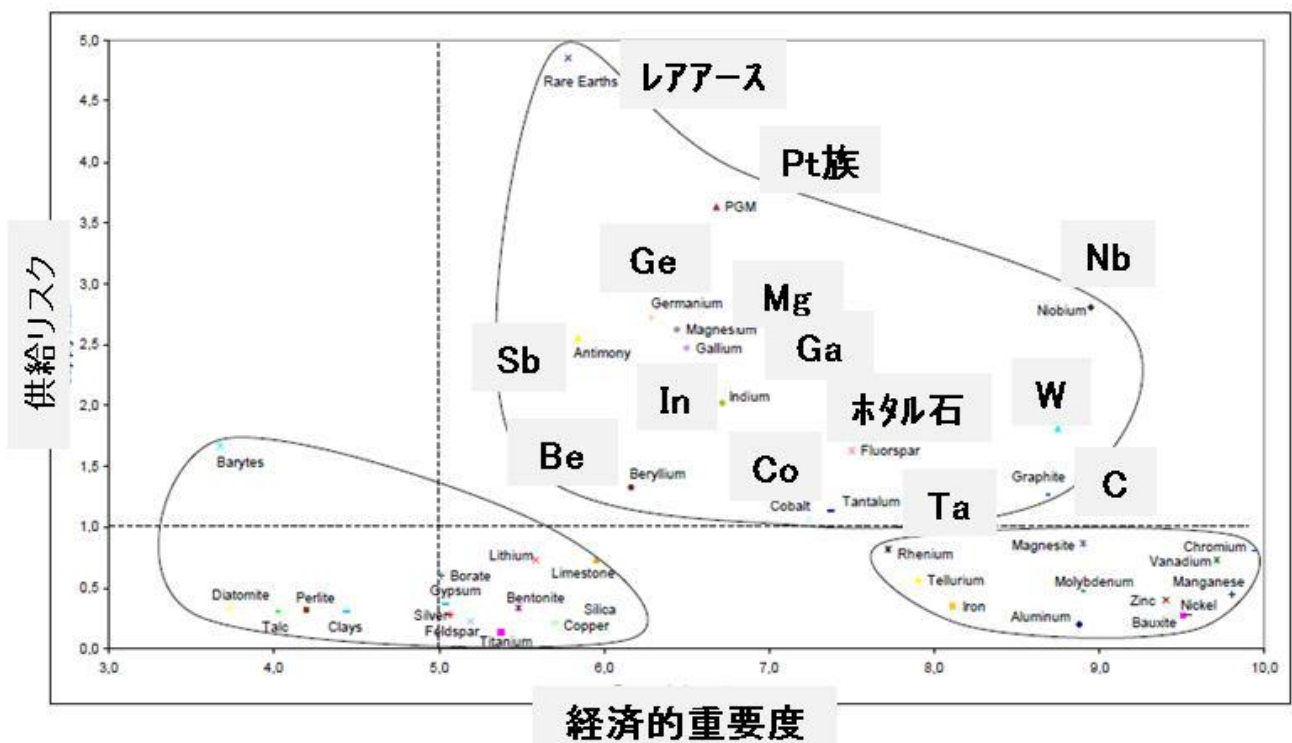


図 I-2-10 元素の経済的重要度と供給リスク

2.4.3 中国の研究開発動向

- ・中国からは「新素材産業“第12次5ヶ年”発展計画(2012.1)」が発表される。
- ・重点材料の1つとして「レアアース機能材料」が取り上げられている。

主な内容:

- 高磁力の新型永久磁石材料等製品の生産プロセスを開発し、高保磁力・耐高温の永久磁石材料とサマリウムコバルト磁石、各項同性粘結ネオジム磁石粉末及び磁石の産業化を推進し、2万t/年の永久磁石の生産設備を新設する。
- 電気自動車用の大容量、高い安定性の新型水素吸蔵合金の開発を加速させ、1.5万t/年の水素吸蔵合金の生産設備を新設する。
- 三基色蛍光粉、3D高輝度蛍光粉の産業化を推進し、白光LED蛍光粉の産業化を実現させて、0.5万t/年発光材料の生産設備を新設する。
- 高品質の希土類研磨剤、流動接触分解装置(FCC)の材料、自動車排ガススクリーナー材料の産業化を加速し、0.5万t/年の研磨剤及び0.5万t/年の触媒材料の生産設備を新設する。
- 硬質塗装の合金材料、機能傾斜材料の硬質合金及びW-Mo合金材料の開発、5,000トン/年の高性能硬質合金の生産設備を新設する。また、4,000トン/年のW-Mo合金の大型工作物、3,000トン/年のW-Mo合金の圧延鋼板の生産設備を新設す。
- 原子級ジルコニウムチューブ、Ag-In-Cd合金棒材の産業化を推進し、1,000トン/年のジルコニウムチューブの生産設備を新設する。

II. 研究開発マネジメントについて

1. 事業の目標

1.1 目標の設定根拠

1.1.1 対象元素の選定

(1) 平成 19 年度開始研究の対象元素

本プロジェクトの開始にあたっては、まず平成 17 年度に先導調査を行った。先導調査では、NEDOは、レアメタル3R技術開発に関する調査を行い、種々の公開情報から、図 II-1-1 に示す①~⑫項目により各種レアメタルのリスク評価を実施し、表 II-1-1 に示す上位 13 鉱種を選定した。

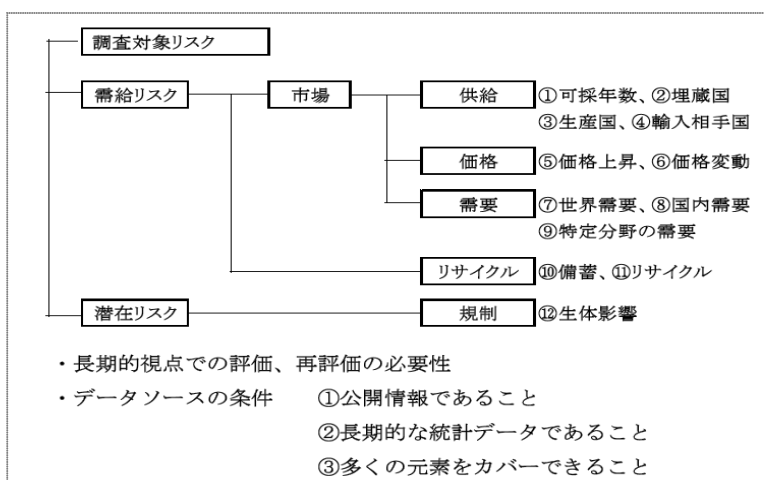


図 II-1-1 各種レアメタルに関するリスク評価方法

表 II-1-1 リスク評価結果

No.	元素名	ケース		カントリーリスクの事例及び今後の動向	対象元素
		族	区分		
3	タングステン(W)	6	遷移元素	・天安門事件による出荷遅延(1989)、中国の鉱石契約一時停止(1991)等リスクの事例がある。 ・超硬工具、電子機器(ヒートシンク等)の需要増加が見込まれる。中国の国内需要が増加している。	○
6	マンガン(Mn)	7		・豪州サイクロンによる出荷遅延(2000)、中国の電力不足による生産障害(2004)等リスクの事例がある。 ・主用途は鉄鋼・アルミニウムの合金元素であり、需要は比較的安定している。	
11	タンタル(Ta)	5		・カントリーリスクの事例はない。	
12	プラチナ(Pt)	10		・一次供給が逼迫し高騰したが、代替材の開発が進み今後のリスクは低い。 ・カントリーリスクの事例はない。	
14	ゲルマニウム(Ge)	14	半金属元素	・カントリーリスクの事例はない。 ・PET樹脂触媒が主な用途であり、需要は安定化している。	
23	インジウム(In)	13		・中国の鉱山事故による減産(2001)、環境汚染による一部精錬所の閉鎖(2006)等、リスクの事例がある。 ・液晶用ターゲット材、無鉛はんだ添加材等需要増加が見込まれる。	○
16	リチウム(Li)	1	アルカリ金属	・カントリーリスクの事例はない。 ・リチウムイオン電池用に需要の増加が見込まれるが、HV車への適用は時間を要する。	
17	ベリリウム(Be)	2	アルカリ土類金属	・カントリーリスクの事例はない。 ・端子・コネクタ等銅合金の添加元素であり、需要は安定している。元素自体に毒性がある。	
31	ランタン(La)	3	遷移元素	・中国政府の対日供給抑制(2000)、環境汚染による生産規制(2006)等、リスクの事例がある。	○
33	ネオジウム(Nd)			・希土磁石、NiMH電池用水系吸蔵合金に需要の増加が見込まれる。	
34	サマリウム(Sm)			・中国の内需も拡大している。	
35	ジスプロジウム(Dy)				
36	イットリウム(Y)			・イットリウムは広義のレアアースである。セリウムとともにレアアースの余剰元素である。	

出典：各種レアメタルに関するリスク評価及び重要元素に関する需給の現状と課題（NEDO 平成 17 年度）

上位 13 鉱種を対象に、カントリーリスクおよび将来の需要動向を考察し、インジウム、ジスプロシウム、タングステンを選定した。これら 3 鉱種について、平成 19 年度から研究開発項目①インジウム低減、②インジウム代替、③ジスプロシウム低減、④タングステン低減、⑤タングステン代替の 5 テーマを開始した。

(2) 平成 21 年度開始研究の対象元素

平成 17 年度の先導調査に続き、平成 20 年度にも、レアメタル・レアアースに関するリスク調査を行い、追加して研究開発を行うべき鉱種を決定した。リスク調査は、種々の公開情報から 5 つの評価軸での調査対象鉱種のスクリーニング と、調査委員会での 3 つの製作評価軸での重要鉱種選定の図 II-1-2 に示した 2 段階で実施した。

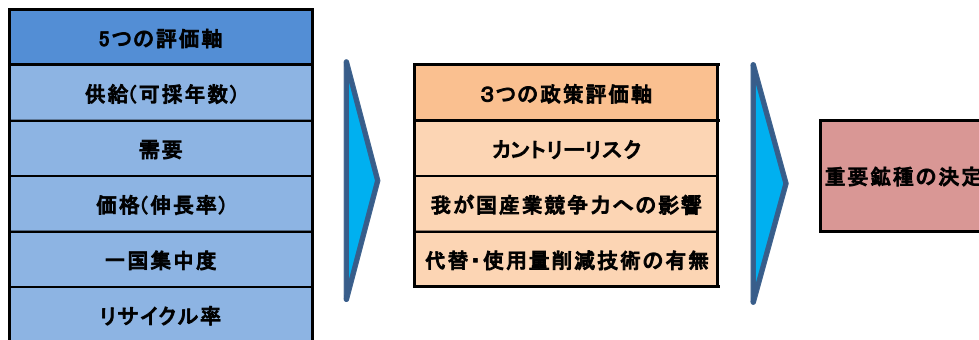


図 II-1-2 リスク調査方法

5 つの評価軸でのスクリーニングでは、図 II-1-1 に示す①～⑫の評価項目および表 II-1-2 に示す評価基準に基づき点付けを実施した。評価点 18 点以上を基準とし、タングステン、ニオブ、アンチモン、白金、リチウム、インジウム、ビスマス、ランタン、セリウム、ネオジム、ジスプロシウム、ユウロピウム、テルビウム、イットリウムの 14 種類を選定した（表 II-1-3 参照）。

表 II-1-2 評価基準及びデータソース

	評価項目	評点	評価基準	データソース
供給リスク	①可採年数 埋蔵量/04年鉱石生産量	3	50年未満	USGS統計
		2	50年～100年	
		1	100年～150年	
		0	150年以上	
	②埋蔵量の1国への集中度	3	90%以上	USGS統計
		2	80%以上	
		1	70%以上	
		0	70%未満	
	③鉱石生産の1国への集中度	3	90%以上	USGS統計
		2	80%以上	
		1	70%以上	
		0	70%未満	
④輸入相手国1国への集中度	3	90%以上	財務省貿易統計	
	2	80%以上		
	1	70%以上		
	0	70%未満		
価格リスク	⑤輸入価格上昇率 \$/kg 2007/1998比率(%)	3	200%以上	財務省貿易統計
		2	150%-200%	
		1	125～150%	
		0	125%未満	
	⑥輸入価格変動率 \$/kg 最高/最低比率(%)	3	200%以上	財務省貿易統計
		2	150%-200%	
		1	125～150%	
		0	125%未満	

	評価項目	評点	評価基準	データソース
需要リスク	㉗世界需要(鉱石生産)の伸び率 2007/1998比率(%)	3	200%以上	USGS統計
		2	150%-200%	
		1	125~150%	
		0	125%未満	
	㉘国内需要の伸び率 2007/2002比率(%)	3	200%以上	各種統計(業界統計を含む)
		2	150%-200%	
		1	125~150%	
		0	125%未満	
	㉙特定用途の需要の伸び率 2004/2002比率(%)	3	200%以上	各種統計(業界統計を含む)
		2	150%-200%	
		1	125~150%	
		0	125%未満	
リサイクル	㉚備蓄の有無	1	国家備蓄なし	
		0	国家備蓄あり	
	㉛リサイクルの状況	2	リサイクルされていない	
		1	一部リサイクルされている	
		0	マテリアルリサイクルが行われている	
		0	マテリアルリサイクルが行われている	
潜在リスク	㉜将来の規制リスク(生体影響)	2	元素自体に毒性がある	
		1	化合物に毒性があり労働衛生問題を起した事例がある	
		1	化合物に毒性があり労働衛生問題を起した事例がある	
		0	毒性がなく、労働衛生問題を起した事例がない	

データソース:㉚、㉛ JOGMEC資料

㉜「健康と元素」南山堂、「14906の化学商品」化学工業日報社、他

表Ⅱ-1-3 平成20年度実施の評価結果

No.	鉱種	H17評価	H20評価	補注
1	Ni	13	14	
2	Cr	14	13	
3	W	18	21	開発中(超硬工具)
4	Co	15	16	
5	Mo	15	17	
6	Mn	17	14	
7	V	14	11	
8	Nb	15	19	
9	Sr	12	9	
10	Sb	15	19	
11	Ta	23	17	
12	Pt	17	18	
13	Pd	12	13	
14	Rh		18	
15	Ge	18	17	
16	Ti	9	10	
17	Li	17	23	
18	Be	17	17	
19	Ga	9	12	
20	B	14	15	
21	Se	16	17	
22	Rb	6	6	
23	Zr	14	17	
24	In	18	25	開発中(液晶透明電極)
25	Te	8	12	
26	Cs	6	6	
27	Ba	6	13	
28	Hf	6	6	
29	Re	13	8	
30	Tl	6	8	
31	Bi	15	19	
32	La	18	20	
33	Ce	15	20	
34	Nd	17	22	開発中(FeNdB磁石)
35	Sm	17	17	
36	Dy	17	24	開発中(FeNdB磁石)
37	Eu		25	
38	Tb		25	
39	Y	20	21	

これら上位の14 鉱種のうち、平成19 年度から取り組んでいるタングステン、インジウム、ジスプロシウム、ネオジム（ジスプロシウムの開発はネオジム磁石「Nd-Fe-B」の開発でもあるため取り組み鉱種とした）の4 鉱種を除いた10 種類の鉱種について、有識者委員会の中で3 つの政策評価軸となるカントリーリスク、我が国産業競争力への影響、代替・使用量低減技術の有無（シーズ研究の有無）、今後の動向の評価を加え、重要な鉱種として、表Ⅱ-1-4 に示した白金族、セリウム、テルビウム・ユウロピウムを選定した。

表Ⅱ-1-4 リスク評価結果

No	鉱種	区分	リスクの分析・今後の動向		鉱種選定	
			今後の供給	今後の需要		
8	Nb	遷移金属	<ul style="list-style-type: none"> 主埋蔵国・生産国はブラジル、カナダ、オーストラリア 鉄鋼添加剤が主用途であり、国内需要（主に低合金高張力鋼）は安定している ブラジルCBMM社の供給安定性（量・価格）は長期間の実績がある 	安定	安定	-
10	Sb	半金属元素	<ul style="list-style-type: none"> 世界需要が減少傾向にある（07/98比97%） プラスチック難燃助剤が主用途であり国内需要も漸減傾向にある（07/98比89%） 欧州における規制強化圧力の増大により需要の減少が見込まれる 	安定	減少	-
12	Pt	遷移金属	<ul style="list-style-type: none"> 輸入相手国はロシアから南アフリカに集中しつつある（2007年80%） 南アフリカの供給懸念・減産が顕在化している ①安全・設備等の問題による鉱山閉鎖 ②電力供給不足による操業停止 ③人種問題に根ざす労働問題 世界需要の伸びが比較的低い（07/98比137%）要因は投資・宝飾向けの減少であり、産業用は急増（07/98比203%うち自動車触媒235%）している 排ガス規制の強化により今後も自動車触媒用途の需要増が見込まれる さらに将来燃料電池触媒用途の需要増が見込まれる 	懸念大	増加	◎
17	Li	アルカリ金属	<ul style="list-style-type: none"> チリが主埋蔵国であるがチリ、オーストラリア、アルゼンチン、中国、カナダ（2007の生産比率各々38、22、12、9、3%）ほかでも生産されている 二次電池向け炭酸リチウム・水酸化リチウムの需要が増加（226～227%）しており今後も増加が見込まれる 	安定	増加	-
31	Bi	半金属元素	<ul style="list-style-type: none"> 中国が主埋蔵国であるがメキシコ、ペルー、カナダ（2007年の生産比各々53、21、17、3%）ほかでも生産されている 世界需要は比較的安定している（07/98比125%） 国内需要・輸入量とも2004年以降は頭打ち、需要減少が見込まれる 	安定	安定	-
	希土類	遷移金属	<ul style="list-style-type: none"> 資源は世界に分布しているが、低価格攻勢により中国以外の鉱山は生産を中止 中国が世界の供給を独占すると同時に価格が高騰 中国国内需増加に伴う中国政府の資源保護・国内優先・輸出抑制政策等の強化 ①増値税還付廃止 ②輸出許可制度 ③EUL制度 ④加工貿易禁止 など 			
32	La		<ul style="list-style-type: none"> 全体の需要が伸びている（239%） 光学ガラス用途の需要は比較的安定している（139%） 水素吸蔵（Ni水素電池）の需要はリチウムイオン電池への移行に伴い減少が見込まれる 	懸念大	安定化	-
33	Ce		<ul style="list-style-type: none"> 全体の需要が伸び（154%）、特に研磨剤分野の需要が急増している（242%） FPDの需要増に応じ今後も需要増が見込まれる 	懸念大	増加	◎
37	Eu		<ul style="list-style-type: none"> Eu、Tb、Dy等の中希土・重希土資源は特に中国への偏在性が高い ほぼ全量蛍光体用途であり需要は引き続き堅調である 欧州における白熱灯廃止の動きに伴いさらに需要増が見込まれる 	懸念大	増加	◎
38	Tb		<ul style="list-style-type: none"> 37Euに同じ。蛍光体用途に加え、その他用途（磁石向け等）の需要も堅調である 	懸念大	増加	◎
39	Y		<ul style="list-style-type: none"> 蛍光体・セラミックス・ジルコニア安定化剤など全体の需要が197%伸びている 全体の35～45%を占める蛍光体用途の需要が234%伸びていると推定される 今後も需要の増加が見込まれる 	懸念大	増加	-

出典：希少金属代替材料開発に関する最新動向調査報告書（NEDO 平成20年度）

選定された3 鉱種について、平成21 年度から研究開発項目⑥白金族低減（2 チーム）、⑦セリウム低減（2 チーム）、⑧テルビウム・ユウロピウム低減（1 チーム）の計3 テーマ（5 チーム）を開始した。

(3) 平成 21 年度以降開始研究の対象元素

本研究開発の研究対象であるレアメタル・レアアースについては、供給に対する不安が現実のものとなってきており、代替材料開発・使用量低減技術開発の重要性はますます高まってきた。また、レアアースについては、平成 22 年 7 月以降、生産国からの供給が絞られ（図 II-1-3 参照）、価格の大幅な高騰（図 II-1-4 参照）、材料の入手難に見舞われた。

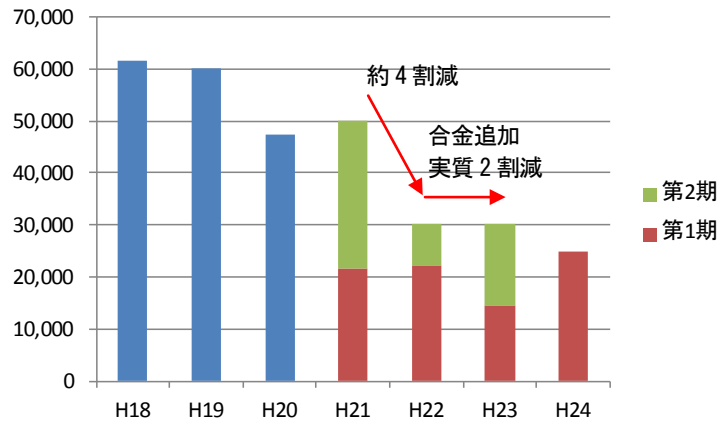


図 II-1-3 中国の EL 枠推移 (出典: 中国商務省 HP、単位: トン)

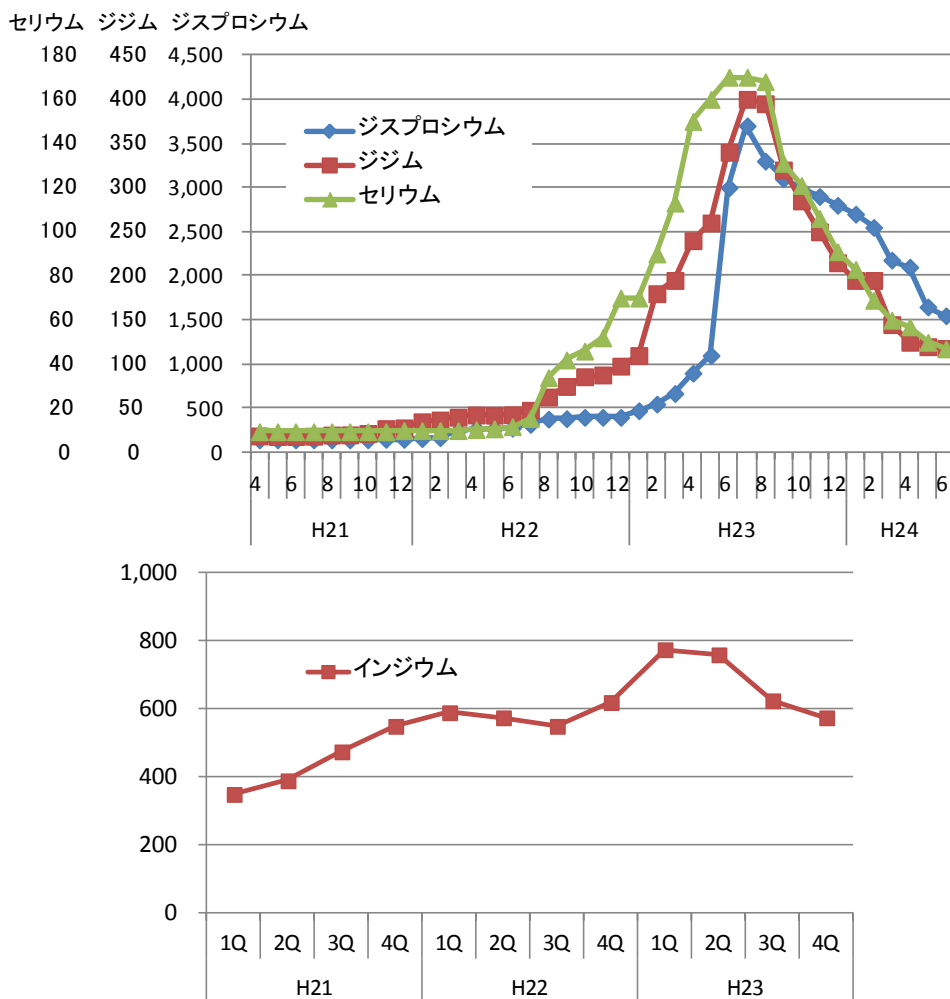


図 II-1-4 レアメタル、レアアースの金属価格推移 (出典: 工業レアメタル、単位: \$/kg)

この情勢に官民挙げて緊急に対処するため、既にリスク調査で重要性が認識され研究開発を開始している鉱種について、平成21年度補正予算以降、下記の研究開発を開始した。

a. 平成21年度補正予算（第2号）によるもの

我が国の低炭素社会実現に必要な電気自動車等の製品においては焼結永久磁石がキーデバイスであり、高保磁力を得るためにレアメタルを使用している。これらレアメタルは一部の外国に供給を依存しているため研究開発項目③でジスプロシウムの使用量低減技術を開発しているところである。しかし昨今の世界的な環境意識の高まりから今後、これら製品の需要増加が見込まれるため、中長期的な視点から抜本的な対策が求められる。このため、我が国の強みであるナノテク技術や新素材・部材の開発力を生かし、レアメタルに依存しない低炭素社会の実現を可能とする新規永久磁石の研究開発を促進する必要がある。そこで、ジスプロシウム使用量低減技術開発を研究開発項目⑨-1として行うこととした。

b. 平成22年度補正予算（第1号）によるもの

セリウムは、平成21年度より一番需要の多い精密研磨向け開発（研究開発項目⑦）の取り組みを開始しているが、次に需要の多い排ガス浄化触媒向け開発については未対応である。排ガス浄化触媒向けセリウムは今後の自動車産業の成長維持・向上には必要な材料であり、供給のリスクを低減するために代替材料の開発、使用量低減技術の開発が必要である。

インジウムは、平成19年度より透明電極向けとしての開発（研究開発項目①②）を開始しており、使用量低減技術の開発や無機材料である酸化亜鉛による代替技術の開発を行っている。透明電極については、有機材料であるナノカーボン材料を用いた新たな機能を備えた代替材料開発が進んでおりグラフェンはその有力な候補になっている。グラフェンは、炭素というありふれた材料を用いており、その特性から材料コストの低減やフレキシブル用途への展開も可能であると考えられ我が国の産業競争力の向上が期待できる。諸外国ではグラフェンの実用化研究が進んでおり、透明電極開発の優位性を確保することが重要な課題となっている。

以上より、排ガス浄化触媒向けセリウムの開発を研究開発項目⑩-1（2チーム）、透明電極向けグラフェンの開発を研究開発項目⑩-2（1チーム）として行うこととした。

c. 平成23年度予算によるもの

上記a. で記述したとおり、平成21年度補正予算（第2号）においてネオジム磁石そのものの代替材料開発（研究開発項目⑨-1）として窒化鉄系やR-Fe-N系（Rは希土類元素）の磁性材料の研究開発を行ったが、実用化までには至っていない。そこで、ネオジムおよびジスプロシウムを代替する新規磁性材料の実用化に向けた技術開発を加速すべく、当該研究を研究開発項目⑨-3（2チーム）として行うこととした。

1.1.2 対象4元素の用途と必要性について

【ジスプロシウム (Dy)、ネオジム (Nd)】

地球環境に優しい輸送手段として電気自動車 (EV) およびハイブリッドカー (HEV) の開発が進められている。1982年に開発されたNd-Fe-B 焼結磁石は、世界最強の永久磁石材料であり、EV やHEV (以下電気自動車と記す)の駆動用大型モータのための最も有望なハード磁性材料である。一般に永久磁石の性能指標である「最大エネルギー積」を高めるには、大きな残留飽和磁化 (着磁状態から磁界を取り去ったときに磁石が持ちうる磁気の強さ) と大きな保磁力 (逆磁界に対する抵抗力) をもつことが必要である。

また、電気自動車で用いるモータでは動作環境が 200℃程度になることが想定される。Nd-Fe-B 焼結磁石は温度上昇により残留磁化、保磁力ともに低下するが、永久磁石としての機能を維持するためには、高温環境において保磁力を優先的に確保する必要がある。温度上昇にともない、保磁力はほぼ直線的に低下することから、高温環境において必要な保磁力の変化を考慮すると室温状態での値に換算すると 30 kOe もの高保磁力を持つ Nd-Fe-B 磁石が必要とされる。

Nd-Fe-B 焼結磁石の主成分であるネオジムは希土類鉱石中では含有率が比較的多い方であるが、これまで中国からの輸入がほとんどであった。最近では中国以外の諸外国からの産出が再開されて一國集中化は回避される傾向にあるが、今後、使用量がさらに増加した場合には供給問題が生じる可能性がある (以上、図 II-1-5~図 II-1-10 参照)。

また、現在、市場に出荷されている Nd-Fe-B 焼結磁石では、保磁力上昇のために重希土類元素ジスプロシウムを添加しているが、ジスプロシウムは希土類鉱石中の含有量が少なく、原産地が中国にほぼ限定されているため、将来の電気自動車等の需要拡大に対し供給不足が発生し、産業の成長を阻害する可能性がある (以上、図 II-1-5~図 II-1-10 参照)。

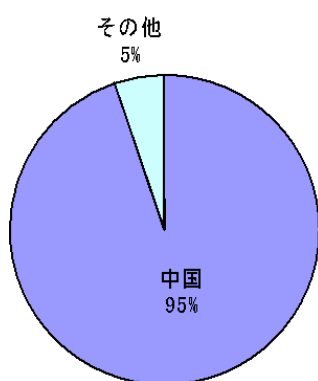


図 II-1-5 レアアースの国別供給割合¹⁾
(平成 15 年 世界市場)

1) USGS「Mineral Commodity Summaries (2005)」

2) JOGMEC「レアメタル備蓄データ集 (2006年版)」

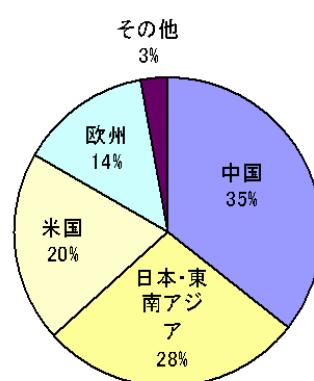


図 II-1-6 レアアースの国別需要割合²⁾
(平成 15 年 世界市場)

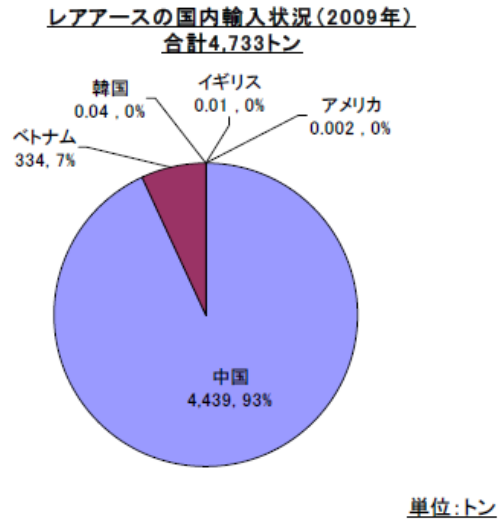
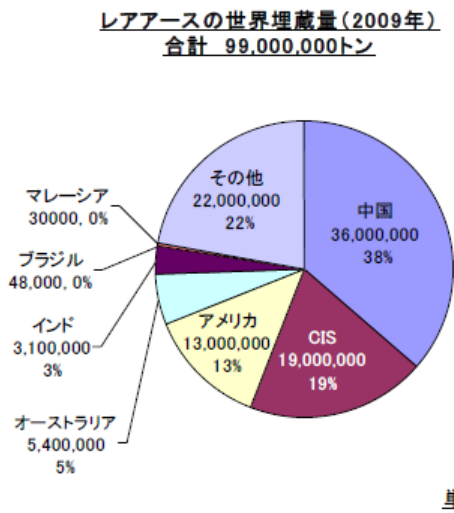


図 II-1-7 レアアースの埋蔵量と国内輸出入元

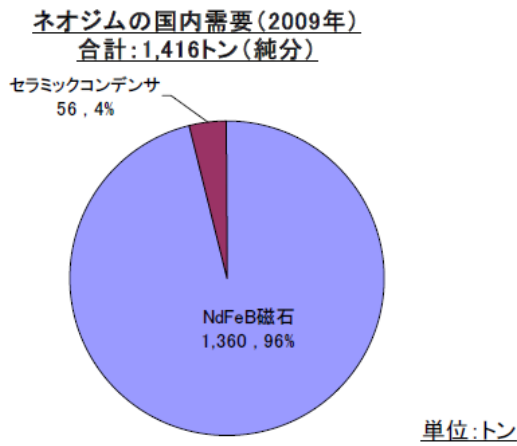


図 II-1-8 ネオジムの使用用途

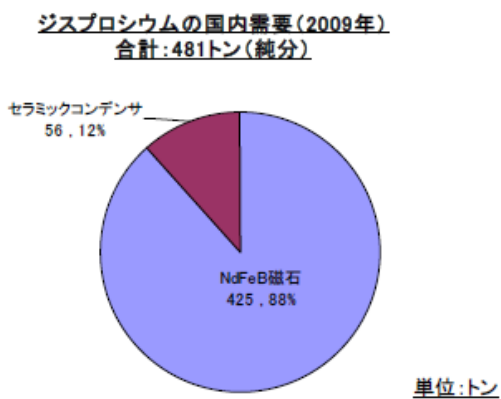
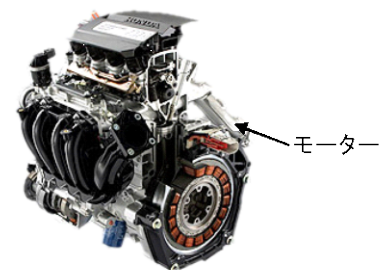


図 II-1-9 ジスプロシウムの製品別需要割合

ハイブリッド自動車用モーター



<http://www.honda.co.jp/tech/auto/engine/honda-ima/detail/index.html>

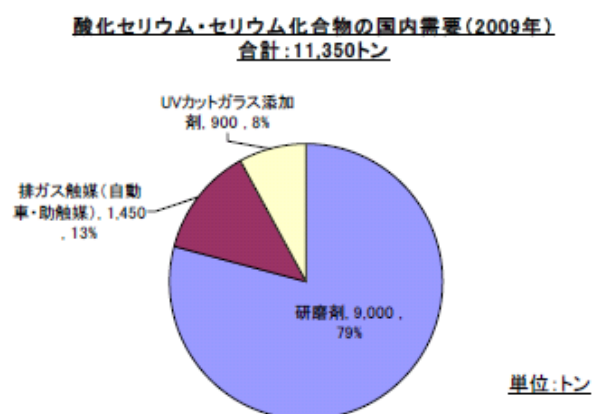
図 II-1-10 モーター使用事例

【セリウム (Ce)】

セリウムの国内需要を見ると、研磨材向けが79%と大半を占め、続いて自動車の排ガス触媒用助触媒向けが13%と続いている（図Ⅱ-1-11参照）。自動車等の排ガス触媒は、活性成分としての白金族ナノ粒子、活性成分が必要とする酸素を貯蔵できるセリウム等の助触媒、及び活性成分を高分散・微細化して担持する担体から構成されている。また、今後排ガス規制が強化されることも考えられ、排ガス触媒は益々重要な製品となってくると考えられる。

一方、セリウムはその輸入量の全量近くを中国に依存しており、中国による輸出枠(EL 枠)の削減を受けて価格上昇や輸入停滞が起き、国内で原料の調達難が発生している。セリウムは軽希土であるためその鉱床は世界に広く分布しているが、現在のところその生産は90%以上を中国が行っている。平成22年になってアメリカやオーストラリアで鉱山再開の動きが活発化しているが、生産が本格的に開始され供給量が増えるのは早くも平成24年頃と見られている。

自動車産業は、2009年度ベースで15兆円市場と、日本を支える重要な産業である。その国際競争力維持向上のためには、白金族やセリウム等の供給リスクを低減する必要がある。



図Ⅱ-1-11 セリウムの製品別需要割合

【インジウム (In)】

平成14年度現在わが国は世界におけるインジウム需要の6割程度を占め、世界最大のインジウム消費国である。そのインジウムの用途は、透明電極が83.4%を占め、ほとんどが透明電極用である。今後、透明電極の主要用途である薄型テレビ、パソコン、モバイル機器等の生産量の大幅な拡大が予想されており、それにともない需要が急拡大するものと思われる。

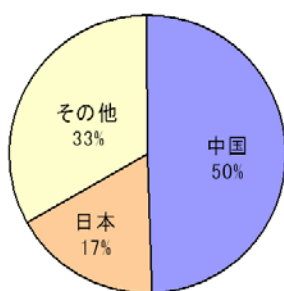


図 II-1-12 インジウムの国別供給割合¹⁾
(平成 16 年 世界市場)

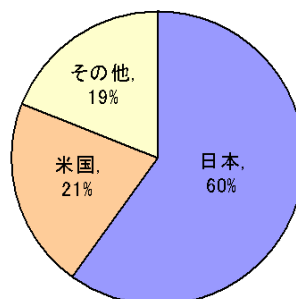


図 II-1-13 インジウムの国別需要割合²⁾
(平成 14 年 世界市場)

1) USGS「Mineral Commodity Summaries (2004)」

2) ECONOMICS OF INDIUM 2003 EIGHTH EDITION ROSKILL

インジウムは、珍しくわが国が平成 16 年度現在で、世界 2 位の生産量を誇り、全供給量の 17%を担っているが、それでも供給の半数強（50%）は中国からの輸入に頼っている。インジウムの供給は最大供給国である中国の影響力が大きく、これに加えて、供給リスクを低減する必要がある。特に、優良なインジウム鉱山であった豊羽鉱山が 2006 年に閉山したことに伴い、わが国の供給量は、今後減少することが予想されることから、供給リスクを低減する必要がある（以上、図 II-1-12～図 II-1-15 参照）。

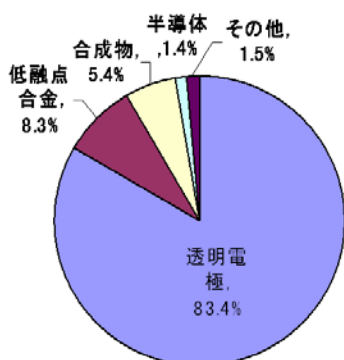
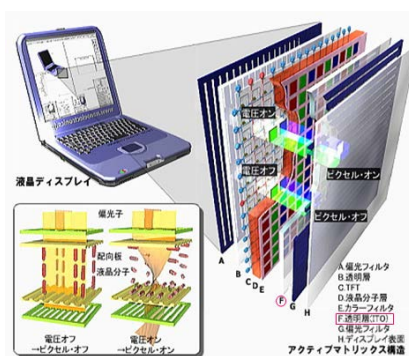


図 II-1-14 インジウムの製品別需要割合
(平成18年 世界市場)

Brian O' Neill「Indium: Is There Enough?」(平成18年)



<http://www.nanoelectronics.jp/kaitai/cd/3.htm>

図 II-1-15 透明電極使用事例

1.1.3 目標の設定方法

各レアメタルに係る代替材料及び使用量低減技術開発の目標は、目標年度における各レアメタルの目標消費削減率とした。この目標は、目標年度におけるレアメタルの予想国内供給量および予想国内需要量を踏まえ、その時の国内需要量を国内供給量の範囲内に抑制させるための抑えるための数値目標となる。目標の設定方法は以下のとおりである。

●目標消費削減率の計算方法

以下の式にて計算する。

$$[\text{目標消費削減率}(\%)] = 100 \times \left\{ 1 - \left(\frac{[\text{予想国内供給量}]}{[\text{予想国内需要量}]} \right) \right\}$$

ただし、特定製品にのみ適用される場合は、以下式にて計算する。

$$[\text{目標消費削減率}(\%)] = 100 \times \left\{ 1 - \left(\frac{[\text{予想国内供給量}] - [\text{特定製品以外の予想国内需要量}]}{[\text{予想国内需要量}] - [\text{特定製品以外の予想国内需要量}]} \right) \right\}$$

●予想国内供給量

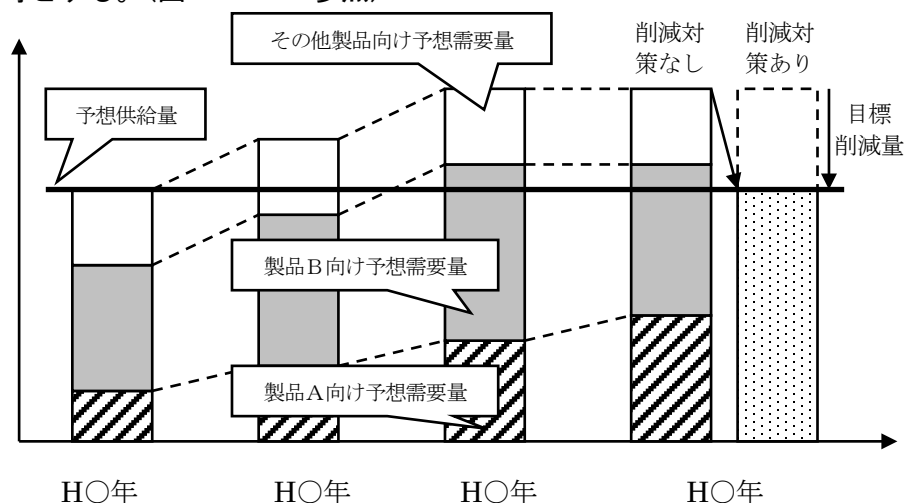
各レアメタルの国内供給量は、現状と同等とする。レアメタル資源の偏在性は、特定国・地域の事情による供給不安定化を招きやすく、供給量の予測を極めて困難なものとしている。また、各レアメタル供給の大半を海外に依存しているわが国においては、産出国における輸出政策動向なども国内供給量の予測に大きな影響を与えることから、予想国内供給量の予測をますます難しいものとしている。そのため、予想国内供給量は、明らかな変動要素を除き、現状維持とした。

●予想国内需要量

各レアメタルの国内需要量は、当該レアメタルを消費する主要製品の生産動向予測データに単位製品あたりに消費される各レアメタル量（現状同等）を乗じて計算する。

$$[\text{予想国内需要量}(\text{t})] = [\text{主要製品の国内生産量}(\text{台})] \times [\text{主要製品における1台あたりのレアメタル消費量}(\text{t/台})] + [\text{その他製品向けの国内需要量}(\text{t})]$$

主要製品に関する既存の産業動向予測データが複数存在する場合、製品ごとに計算を行い、その和をもって予想国内需要量としている。なお、その他製品の国内需要量については、現状（平成16年度）と同等とする。（図Ⅱ-1-16 参照）



図Ⅱ-1-16 予想国内供給量と予想国内需要量のイメージ

1.1.4 削減目標の設定根拠

【ネオジム、ジスプロシウム】

ジスプロシウムの需給バランスに大きな影響を与えると想定されるものに、ハイブリッド自動車・デジタル製品の生産（内蔵のモーターや VCM 需要がのびるため）、主要産出国である中国における E/L 発給枠の抑制、新規鉱山の採掘開始がある。

今後もハイブリッド自動車・デジタル製品の生産に伴うジスプロシウムの需要が伸び続けると思われること、中国の内需拡大により輸出拡大の動きが働きにくいと思われること、新規鉱山からの供給量は全世界供給量のごく一部に過ぎないこと、などから長期的にはジスプロシウムの需給バランスは緊迫する方向にあると考えられる。平成 22 年におけるジスプロシウムの予想国内需要量は、同年の予想国内供給量の 1.43 倍と想定されることから、ジスプロシウムの代替材料開発等に係る目標を消費量削減率 30%と設定した。（図 II-1-17 参照）

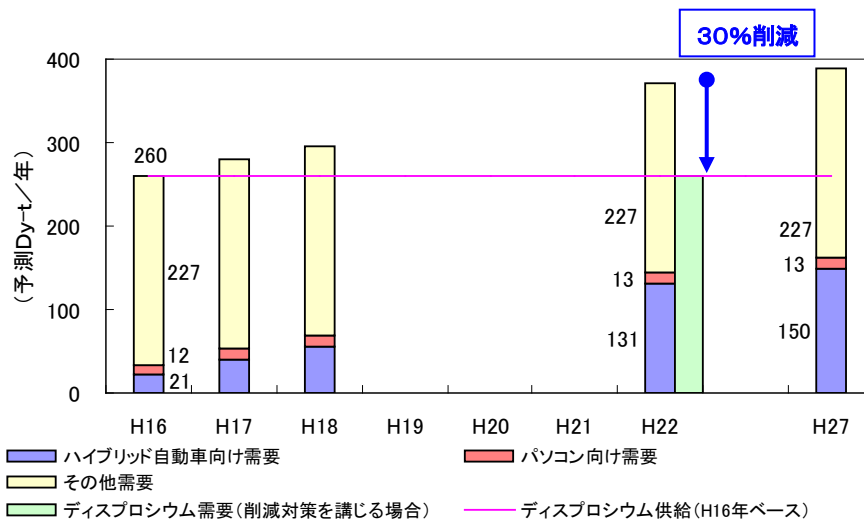


図 II-1-17 わが国におけるジスプロシウム供給と

主要製品に関するジスプロシウム需要の予測

さらに、ネオジム磁石そのものを代替することで、平成 22 年のネオジム、ジスプロシウムを 100%削減することを目標に設定した。（図 II-1-18 参照）

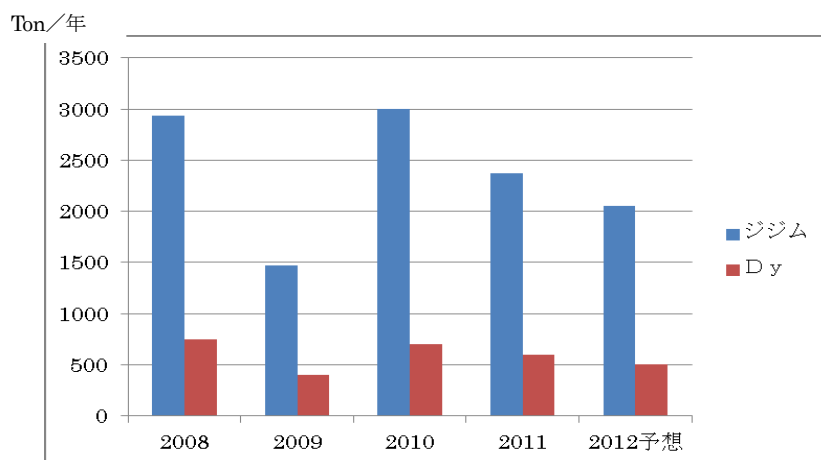
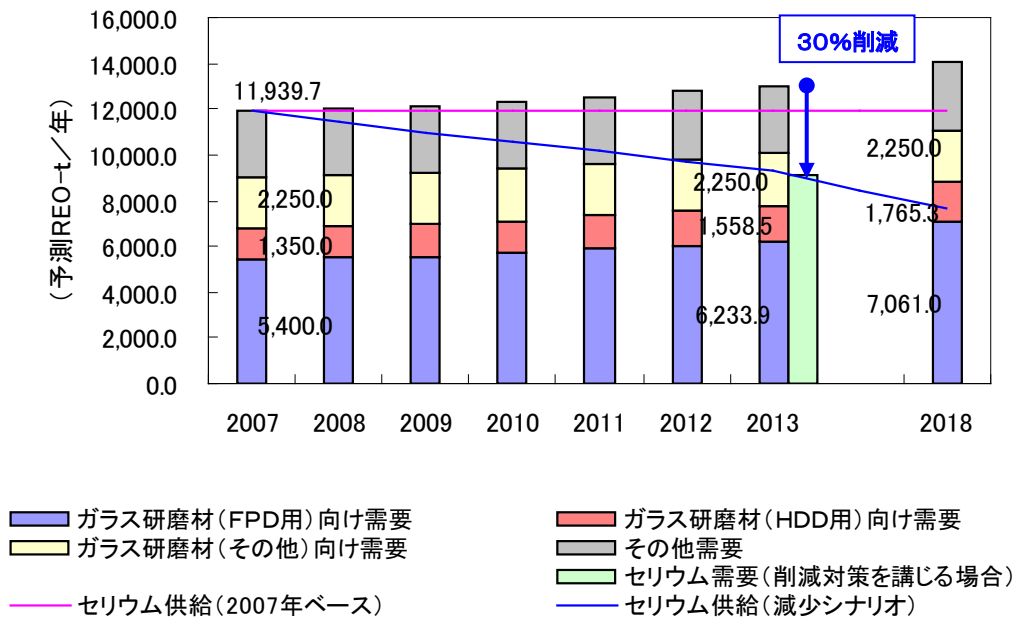


図 II-1-18 ネオジム焼結磁石生産量から算出した、ジジム（ネオジムの原料名）、Dy 輸入量の推移

【セリウム (Ge)】

セリウムの需給バランスに大きな影響を与えると想定されるものに、パソコンや平面型テレビの需要増大、ガソリン車やディーゼル車の普及拡大、主要産出国である中国におけるE/L発給枠の抑制などがある。特に限られた輸出許可枠（重量ベース）の中では、重量単価が安価なセリウム化合物は輸出の優先順位が下がる可能性もあると考えられる。中国国外で新規鉱山の開発予定があるものの、世界の需要動向によっては操業開始に至らないことなどから、需給バランスを緩和させる要素としては弱い。

今後も上記電気製品や自動車の需要が伸び続けると思われること、中国の内需拡大により輸出拡大の動きが働きにくいと思われること、新規鉱山からの供給増はすぐに期待できないこと、などから長期的にはセリウムの需給バランスは逼迫する方向にあると考えられる。平成 25 年におけるセリウムの予想国内需要量は、同年の予想国内供給量（年率 4%で供給量が減少すると仮定）の 1.39 倍と想定され、この需給ギャップからは削減率は 30%が目標となる（図Ⅱ-1-19 参照）。この削減率は政策的な判断、研究シーズからの削減の可能性を加味しセリウムの代替材料開発等に係る開発目標は、平成 19 年を基準として、需給ギャップと同じ削減率の 30%と設定した。



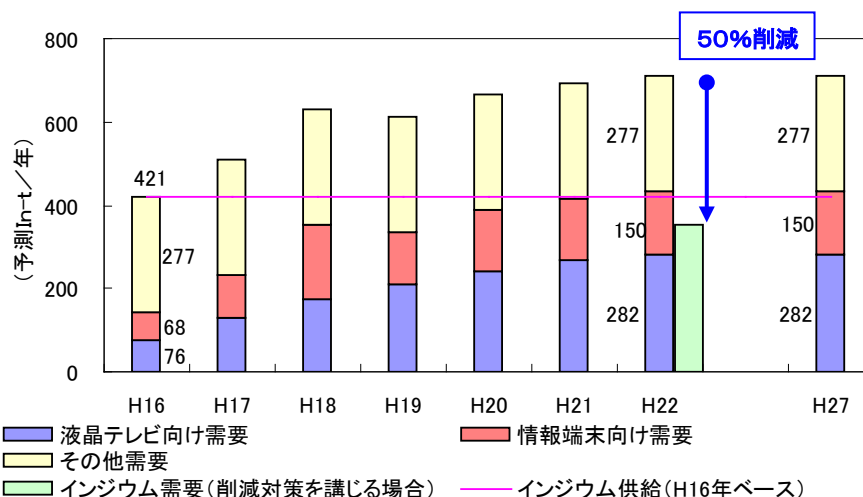
図Ⅱ-1-19 わが国におけるセリウム供給と主要製品に関するセリウム需要の予測

【インジウム】

需要量の増大要因としては、透明電極の主要用途である薄型テレビ、パソコン、モバイル機器の生産量の増大が挙げられる。（透明電極使用量の内訳は、各種液晶ディスプレイのカラーフィルター向けが 48%、薄膜トランジスタ利用の液晶ディスプレイ向けが 33%、プラズマディスプレイパネル向けが 10%、その他 9%といわれている。薄膜トランジスタ利用の液晶ディスプレイ及びカラーフィルターを使用する代表例が液晶テレビ、パソコン、携帯電話である。）一方、ITO¹膜生成プロセスでの使用量低減、使用済み製品からのリサイクル率向上により、需要量の減少も期待できる。

インジウムの供給は最大供給国である中国の影響力が大きい。

平成 22 年度におけるインジウムの予想国内需要量は、同年の予想国内供給量（平成 18 年 3 月の豊羽鉱山閉山に伴い、国内生産量の減少分を見込んでいる）の 1.69 倍と想定されることから、インジウムの代替材料開発等に係る目標を消費量削減率 50%と設定した（図Ⅱ-1-20 参照）。ただし、液晶モニタ等の大型化や新規用途開拓が予想以上に進展することも想定され、技術開発に加え、資源確保戦略もあわせて推進していくことが重要であると考えられる。



図Ⅱ-1-20 わが国におけるインジウム供給と主要製品に関するインジウム需要の予測

¹ Indium Tin Oxide: インジウム・スズ酸化物

1.2 全体目標

以上の検討結果から、全体目標として以下を設定した。最終目標（各研究開発項目終了年度末）では、希少金属元素の使用原単位（一製品当たり）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ポ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認する。また、製品の機能や製造コストは少なくとも現状と同等を維持することを前提とする。

研究開発項目	対象元素	使用原単位の低減目標値
⑨-1	永久磁石向けジスプロシウム (Dy)	現状から 30%以上低減
⑨-3-1、⑨-3-2	永久磁石向けネオジム、ジスプロシウム (Nd、Dy)	現状から 100%低減(代替)
⑩-1A、⑩-1B	排ガス浄化向けセリウム (Ce)	現状から 30%以上低減
⑩-2	透明電極向けインジウム (In)	現状から 50%以上低減

1.3 詳細目標と設定根拠

詳細な数値目標は以下の通りである。

⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

資源枯渇に脅かされない至極ありふれた元素である鉄と窒素を主原料とすることにより脱希少金属化を可能とさせ、現行のNd-Fe-B系磁石の特性を凌駕するポテンシャルを持つ高飽和磁束・高磁気異方性新規磁石材料の探索を行う。鉄-窒素系化合物として窒化鉄系材料と希土類(R)-Fe-Nに着目し、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析と磁気特性評価を通し、窒化鉄の所望相の合成技術指針の獲得とR-Fe-Nのバルク化技術の構築を図る。

最終目標：平成22年度

(1) 窒化鉄系材料の開発

- ・出来る限り早期に80%以上の $Fe_{16}N_2$ 相からなる微粒子を作製し、高性能磁石化に資する基本特性を確認する。
- ・磁石化に向けて、より保磁力を高める磁性粉末の開発指針を得る。

(2) R-Fe-N系材料の開発

- ・モータ用磁石としての実用を考え、保磁力20kOe程度を目標とする。

《設定根拠》

(1) 「窒化鉄系材料の合成とその基礎特性把握」

これまで蓄積してきた窒化鉄薄膜に関する豊富な知見をもとに、これまで獲得してきたナノ粒子化技術を援用し、所望相である $Fe_{16}N_2$ 相が実現可能な直接合成あるいは間接合成技術の獲得を目指す。

(2) 「R-Fe-N系磁石の高性能化に向けた要素技術開発」

R-Fe-N系化合物の優れた磁気特性に着目し、これらを高充填でバルク化して高性能磁石とするための要素技術を開発するため、磁性粉末やバインダ材料などの材料とパルス

通電焼結法、低温せん断圧縮法、超高压法などのバルク化技術を検討する。また、非平衡相を作製できる薄膜法や超高压を用いて新たな R-Fe 系化合物を探索する。

(3) 「新規磁石材料の高特性化に向けた指導原理獲得」

アトムプローブなどの微細構造解析技術および電子顕微鏡観察によるナノ粒子の微構造観察技術を上記(1)項および(2)項で作製した新規磁石材料に適用し、粒子の粒径・形態や焼結状態、結晶配向性、組成分布等の構造情報を得て、新規磁石材料の高特性化に向け、それら構造的知見を合成・プロセス条件にフィードバックする。

(4) 「モータの評価・解析」

新規磁石および希土類磁石を用いたモータの特性比較および新規磁石に適したモータ構造に関する検討で得られた知見を実証するため、実際に磁石モータを試作し、試験を行う。まずは先行して希土類磁石を用いたモータの試作・試験を行うことで、シミュレーションから実証試験までを一貫して行える態勢を作る。

⑨-3 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発

資源枯渇に脅かされない元素を主原料とし、現行の Nd-Fe-B 系磁石と同等の性能を有する新規磁石の開発を行う。開発にあたっては、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析と磁気特性評価を通し、新たな磁性材料の成型技術の構築を図る。

【目標】 平成24年9月

(1) さらなる磁性材料の探索 →⑨-3-2

① 新規磁石材料の探索：磁石材料探索マップの中で有望と思われる、代替磁石の可能性を見極める。

(2) 磁石化技術の開発 →⑨-3-1

① 「分散・表面修飾の基礎技術」：単分散粒子 50vol%以上

② 「大量合成技術」：約 10g/バッチの合成技術確立

③ 「バルク化技術」：ナノ鉄粉末において磁性相充填率 70vol%以上のラボレベル実証

《設定根拠》

(1) さらなる磁性材料の探索 →⑨-3-2

Nd-Fe-B 系焼結磁石に代わる磁性材料の新たな探索と実用化技術開発に係る磁石化技術の確立を目指し、① 新規磁石材料の探索、② 複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発を実施する。

独自の経験則に基づく磁石材料探索マップの中で有望と思われる、ソフト/ハード複合材料系およびハード/ハード複合材料系を基本構成とする人工格子膜磁石、および Bi-Zn 系、Bi-Mn 系低融点金属バインダを用いた上記構成のメタルボンド磁石の試作を

通して、これらの磁石性能、耐久性等を評価し代替磁石の可能性を見極める。

(2) 磁石化技術の開発 →⑨-3-1

永久磁石をはじめとする磁性材料分野において、①「分散・表面修飾の基礎技術」、②「大量合成技術」、③「バルク化技術」、④「評価・解析」、の4つの研究項目を設定し、窒化鉄ナノ粒子を約10g/バッチで合成可能な技術の構築を目指す。また、特定粒径の窒化鉄ナノ粒子に対する分散・表面修飾プロセスを構築し、バッチ当たりの全試料粒子のうち体積分率で50%の粒子が単分散できた状態を目指す。

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発/排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

本研究開発は、排ガス浄化向けのセリウム使用原単位を30%以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発するものである。具体的には、まず、セリウム低減触媒および不使用触媒について、基本原理を確立した後、セリウム低減触媒および不使用触媒について、大量調製技術を開発する。さらに、セリウム使用量を30%以上低減した触媒材料ならびにガソリン車向け排ガス浄化触媒を製作し、性能を評価する。

目標設定に当たっては、以下の状況を考慮した。排ガス触媒のセリウムは主として酸素貯蔵能(OSC)の性質を対象に利用されており、エンジン制御が同等の制約下では、セリウム低減はそのままOSCの低下ならびに浄化性能の低下につながることは容易に想定される。急激な低減は、触媒浄化材のみにとどまらず排気処理システムの変更を余儀なくさせる問題がある。OSC材のセリウム含量については、セリアジルコニア系複合酸化物が市場のほとんどを占めそのセリウム原子%(ジルコニウム+セリウム合計に対して)で50%(60~40%)付近でOSC性能がもっとも優れるとされる。実際の利用上、性能選択や成分混合によってこの前後に相当な幅のある状況にあると考えられるが、本事業ではセリウム含量(金属成分の原子%)で35%~25%の値を低減材として想定し、触媒性能の保持を確保でき、かつ将来の大幅低減を目指せる技術を開発する。したがって、現状OSC最高水準品から上記記載の30%低減材としての開発目標値とする。

はじめに、材料自体の設計概念と合成法、さらに実用性の高い製造方法を用いた材料作製、最終的には触媒としての性能を確保しかつ基本触媒材のセリウム含量を30%以上低減する。セリウム低減目標を実現しつつ、将来の新規開発材の汎用性を確保することとした。30%低減技術を、その設計概念ならびに製造方法をともなった技術として提示するよう目標に組み込むことによって、要求性能のフレキシビリティを確保するとともに、将来のさらなる低減化にも展開できるよう配慮した。さらに、貴金属等を含む実車載用触媒における低減目標を30%として、システムの大幅変更がない状態での開発材(触媒コンバーター内)の利用が比較的早期に利用できることをめざす目標となっている。

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発/高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術を開発するため、理論シミュレーションを用いた研究開発支援、セリア高機能化の原理解明に不可欠なセリアあるいは代替酸化物粒子のキャラクタリゼーションに基づき、セリアと担体の相互作用に注目した複合化による高性能化、セリア高次構造の形態制御による高性能化、ペロブスカイト系など新規セリア代替材料開発を行う。さらに、実用化を考慮した自動車実排ガステストを実施し、貴金属使用量を増加させることなくセリウム使用量を30%以上削減する技術を確立するとともに、実用触媒の観点に基づく触媒の設計指針および実用化指針を確立する。

【目標】

(1) 材料設計

- ・触媒開発研究をトータルに支援できる新規アプローチ手法の開発と応用展開
- ・極薄セリア膜を作成しシンタリング挙動を観察
- ・実用観点に基づく材料設計指針の提示
- ・速い応答および長周期での酸素吸放出の性能を定量化し、材料構造との関連を提示

(2) セリウム低減のためのシーズ技術開発

- ・セリアナノ粒子表面の薄膜シリカで被覆と高温耐シンタリング効果の評価
- ・溶液反応による板状セリア基複合酸化物ナノ粒子の合成と OSC 機能の評価
- ・ゾルゲル技術の改良による、1000°C以上の高温耐熱性に優れた複合化セリア触媒の開発と基準セリアを越える OSC の達成
- ・空气中 1200°C、50Hr の熱処理後、 α -アルミナが検出されず、70m²/g 以上の表面積を示すアルミナ担体の開発
- ・金属-セリア相互作用利用による OSC 量と速度の 2 倍以上の達成
- ・In-situ レーザーラマン、紫外可視分光による酸素吸放出速度向上の実証
- ・酸化物-セリア複合粒子で、Ce 量を 1/5 に削減、酸素吸蔵容量を 5 倍増加。
- ・光電子分光装置で複合粒子の酸化還元機構、界面構造および触媒作用を解明
- ・鉄を用いる非セリア系触媒の開発
- ・セリアの有するシンタリング抑制機能をセリアフリー材（アルミナ）で代替した触媒開発
- ・高活性・省 Ce 触媒として期待される BaZrO₃:Ce 微粒子の液相合成法による調製
- ・超臨界担持法による金属担持触媒調製、分散状態との相互関係の解析
- ・マイクロ波を用いて、OSC 能を有する材料の低温短時間プロセッシング技術開発と OSC 能・熱サイクル特性を向上させる技術を開発
- ・大量合成サンプルの調製パラメータを最適化することで、セリア使用量を 30% 削減
- ・基準触媒仕様の設定および新規開発触媒から優れた活性の触媒選出。
- ・「実排ガスによる小型ハニカム触媒性能評価システム」を開発して開発触媒の性能

評価を実施、材料開発へフィードバック

- ・プロジェクトで開発された新規触媒についてセリア 30%削減目標を実車のモード試験において評価
- ・有望シーズの概算製造コストを計算し、採算ベースにのるかどうかを判断。より低コストで量産できる技術を検討

(3) 実用触媒の観点に基づく評価指針と実用化の検討

- ・プロジェクト内で選抜した成果材を触媒化し、実用触媒評価条件にて性能を評価

《設定の根拠》

(1) 材料設計

- ・理論シミュレーションを用いた研究開発支援、セリアあるいは代替酸化物粒子のキャラクタリゼーション
- ・セリアナノ粒子の合成、ラングミュア・ブロッジレット法による単層膜累積
- ・実用化の観点からのプロジェクトの推進
- ・短い研究開発期間で指針を得るため簡易に測定する方法の開発

(2) セリウム低減のためのシーズ技術開発

- ・環境負荷の低減とシリカ被覆のための反応制御のための水溶液系の利用
- ・セリアの(100)面が優れた OSC 特性を示すことから、(100)面を露出したセリア基複合酸化物ナノ粒子の合成により OSC 機能の向上を期待
- ・ゾルゲルは均一微粒子の調製や複数成分の均一混合を可能にする技術だが、1000°C以上の耐熱性が十分でない。その克服により、耐久性に優れた高 OSC 材が得られる
- ・実使用条件下での長期間使用と対応する加湿エイジング条件 (1000°C、20Hr) よりも過酷な加速条件として 1200°Cエアークリーニング 50Hr を設定
- ・Ni 添加により OSC 量を 2.5 倍、速度を 3.5 倍。金属添加による OSC 向上 Ru 添加セリアが TWC 評価で高い耐久性
- ・In-situ レーザーラマン開発し in-situ UV-Vis とともに OSC 速度向上を実証。町田触媒、多井触媒の in-situ Raman 測定を実施
- ・セリアの表面反応性を保持したまま、酸素吸蔵源を金属酸化物に置き換えることで Ce 使用量を低減できる。その構造と触媒作用の解明が複合粒子の高性能化に必要
- ・高温条件下ではセリア系触媒の結晶構造が崩れ所望の性能が得られないため、熱に安定なジルコニアを加えた鉄系触媒で材料を開発
- ・自動車触媒におけるセリアの役割は①酸素吸蔵に加えて②高温での金属粒子成長抑制にも有効であること実証されている。一般に、1000°Cエイジング後の活性低下の有無が②の効果の判定に用いられる。
- ・高い熱的・化学的安定性を有する BaZrO₃ の Zr サイトの一部を Ce が置換 → 複雑な固溶構造形成 → 高い触媒能発現 → 高活性・省セリウム触媒の創成

- ・超臨界金属担持においては、圧力の効果が温度に比較して大きいこと、担持量には加法性があることを確認
 - ・セリア触媒に微量の Rh 金属を高分散微粒子の状態を超臨界担持することに成功。また、その OSC 特性は従来法に比して、高レスポンス性を示すことが判明
 - ・セラミックス材である触媒材料は合成に高温・長時間必要であり、貴金属担持には更に時間が必要である。安価に提供するには、触媒を低温・短時間で合成し、かつ高性能化する必要性
 - ・非線形回帰手法と実験計画法とを組み合わせることで、組成などの調製にかかわる多数のパラメータを速やかに最適化し、酸素吸蔵能を最大化
 - ・1wt%Rh/CeO₂+2.5wt%Pd/Al₂O₃ を基準触媒仕様に設定。総数 193 試料の活性試験から 8 試料を実機試験用触媒に選定
 - ・開発段階では、比較的少量の開発触媒で製作可能な小型ハニカム状触媒による性能評価が必要
 - ・実車評価によるプロジェクト目標達成の評価
 - ・各研究機関からのシーズに対して量産化することが役割である。設備化を含めたコストを概算し、採算を考慮した技術設計が量産化への第一歩
- (3) 実用触媒の観点に基づく評価指針と実用化の検討
- ・成果材料の実用化の検討

⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

本研究では、グラフェンによるITO透明導電膜代替の実現のため、グラフェンの低温プラズマCVD法による高品質合成技術および大量生産技術、さらに精密加工技術、フィルム形成技術を開発し、グラフェン透明導電膜の応用製品として抵抗膜式タッチパネルの実証を行う。

【最終目標】

(1) 高品質グラフェン合成技術の開発

- ・シート抵抗500Ω/sq以下で透過率87%以上の特性を持つグラフェンを開発する。

(2) ロールtoロール大量合成技術の開発

- ・幅600mm、連続合成速度0.6m/分のロールtoロール合成技術を開発する。
- ・基板表面前処理・グラフェン合成・後処理機能を有するマイクロ波表面波プラズマCVDロールtoロール成膜装置を開発する。

(3) 透明フィルムの製造技術の開発

- ・線幅0.3mmのグラフェン膜のパターニング方法を開発する。
- ・PETフィルムへの転写技術を確立し、300mm幅、長さ5mの連続転写を実現する。

(4) 透明導電性フィルムの性能評価

- ・タッチパネルに要求される電氣的・光学的特性、耐環境性、耐摺動特性、信頼性を評価する。

- ・ グラフェン透明電極を利用した抵抗膜式タッチパネルを試作し、シート抵抗 $500\ \Omega/\text{sq}$ 以下、全光線透過率87%以上、 $b * \text{値}$ 4以下、ヘイズ3%以下、シート抵抗リニアリティ $\pm 1.5\%$ を確認する。

《設定の根拠》

- (1) 現行のITO透明導電膜を用いた抵抗膜式タッチパネルと同等性能またはそれ以上
- (2) 生産レベルの大量合成を見据えた目標値に設定(ITO透明導電膜に対して、製造コストで競争力を確保するために必要なスループット)
- (3) 抵抗膜式タッチパネルの仕様と同等の加工線幅に設定するとともに、連続転写技術の検証を行うために最小限必要なレベルに設定
- (4) 抵抗膜式タッチパネルに用いられるITO透明導電フィルムの代表的特性を目標とした。

2. 事業の計画内容

2.1 研究開発の内容

⑨-1 Nd-Fe-B 系磁石を代替する新規永久磁石の研究

研究開発項目①「窒化鉄系材料の合成とその基礎特性」

鉄結晶格子間へ窒素原子が侵入した準安定相窒化鉄 Fe_{16}N_2 は、磁気体積効果の増強によって飽和磁化 ($4\pi M_s$) が 24000 G と Nd-Fe-B 系希土類磁石に比べ 50%程度大きく、結晶磁気異方性エネルギーも希土類系磁石と同程度 ($\sim 1 \times 10^7 \text{erg/cm}^3$) であることから高磁石特性化するかわち高 $(BH)_{\text{max}}$ 化が期待される。

本研究では、申請者等が蓄積してきた窒化鉄薄膜に関する豊富な知見をもとに、これまで獲得してきたナノ粒子化技術を援用し、所望相である Fe_{16}N_2 相が実現可能な直接合成あるいは間接合成技術の獲得を目指す。出来る限り早期に 80%以上の Fe_{16}N_2 相からなる微粒子を作製し、高性能磁石化に資する基本特性を確認すること、また、磁石化に向けて、より保磁力を高める磁性粉末の開発指針を得ること、を目的とする。

研究開発項目②「R-Fe-N 系磁石の高性能化に向けた要素技術開発」

R-Fe-N 系化合物 (R: 希土類元素) の代表である $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 化合物は、飽和磁化 ($4\pi M_s$)、理論的最大エネルギー積 ($(BH)_{\text{max}}$) がともに Nd-Fe-B 系磁石の主相 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 化合物に匹敵し、理論保磁力の異方性磁場 (H_k) はその 5 倍、キュリー温度 (T_c) も 200 °C程度高い。Sm-Fe-N 系化合物の優れた磁石特性は結晶格子間に窒素原子が侵入型に固溶することによって生じるが、高温にすると Sm 窒化物と鉄に分解するため焼結でバルク化ができない、液相が出現しないため充填率が上がらない、などの問題点があり、本系化合物の用途は主としてポンド磁石に留まっている。しかしながら、その有するポテンシャルならびに化合物の種類が多さから、バルク化技術を検討することにより、本系化合物群には Nd-Fe-B 系磁石に匹敵する磁石特性を出現させる可能性を秘めている。

本研究グループでは R-Fe-N 系化合物の優れた磁気特性に着目し、これらを高充填でバルク化して高性能磁石とするための要素技術を開発するため、磁性粉末やバイнда材料などの材料とパルス通電焼結法、低温せん断圧縮法、超高压法などのバルク化技術を検討する。また、非平衡相を作製できる薄膜法や超高压を用いて新たな R-Fe 系化合物を探索する。これらの検討によって、20kOe 以上の保磁力を有したバルク磁石実現に向けての指針を得ることを目的とする。

研究開発項目③「新規磁石材料の高特性化に向けた指導原理獲得」

新規磁石によるさらなる高磁石特性化を実現するためには、真性的な磁気物性値である飽和磁化や結晶磁気異方性磁界に対し、結晶対称性やバンド構造を決定する原子配置や電子軌道等の原子スケールのミクロな観点からの理論的検討が有効な手法のひとつである。本研究では、材料計算科学的手法を用いて新規磁石材料の高飽和磁化・高結晶磁気異方性化に資する指導原理獲得を目指す。

一方、残留磁束密度、保磁力、等の磁石特性は、飽和磁化や結晶磁気異方性エネルギー等の材料に真性的な磁気物性値のみならず、粒子の粒径・形態や焼結状態、結晶配向性などの粒子集合

状態、すなわちナノスケールの微細構造に強く依存する。このため、様々な構造評価技術を通して得られる微細ナノ構造に関する知見は、磁気特性改善のためには必要不可欠となっている。本研究では、アトムプローブなどの微細構造解析技術および電子顕微鏡観察によるナノ粒子の微細構造観察技術を研究項目①および②で作製した新規磁石材料に適用し、粒子の粒径・形態や焼結状態、結晶配向性、組成分布等の構造情報を得て、新規磁石材料の高特性化に向け、それら構造的知見を合成・プロセス条件にフィードバックする。

研究開発項目④ 「モータの評価・解析」

窒化鉄や Sm-Fe-N などの新規磁石を用いたモータの特性については、これまでに報告された例は無い。ここでは、既存の希土類磁石を用いたモータと比較・検討することで、モータ応用の観点から見た新規磁石の特徴と位置付けを明らかにする。

⑨-3-1 Nd-Fe-B 系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

研究開発項目① 「分散・表面修飾の基礎技術」

平成24年度 開発目標：分散・表面修飾により全粒子のうち単粒子の割合が50%以上となること

一般的にナノ粒子は低温で焼結を行っても粒成長しやすいため、粒径が大きくなりやすい。粒径が大きい場合、一度逆磁区が発生するとこれを阻止することができないため、保磁力の低下に繋がる。そこで、窒化鉄ナノ粒子粉末の粒成長を抑制するには、粉末粒子表面を修飾することが重要となる。これまで構築した窒化鉄ナノ粒子合成技術を基盤として、将来のバルク磁石化を念頭に磁氣的に孤立した単磁区ナノ粒子を達成すべく、窒化鉄ナノ粒子の分散技術、ならびに、窒化鉄ナノ粒子表面を非磁性材料で覆う表面ナノ修飾技術の構築を行う。

研究開発項目② 「大量合成技術」

平成23年度 開発目標：5～10 g/Bの合成技術確立

平成24年度 開発目標：約10 g/Bの合成技術確立

現在まで、本研究グループは $Fe_{16}N_2$ 単相の窒化鉄ナノ粒子を最大でも $\sim 2g/B$ 弱の単位でしか得られず、これは現行設備の物理的な制約による。研究項目①および研究項目③の検討において相当量の窒化鉄ナノ粒子を要し、本研究に先駆け導入した大型炉を一年内に立ち上げることが必須である。本研究では、5～10 g/Bの合成を念頭に、東北大学（高橋研究室）および京都大学はT&Tイノベーションズと強力に連携し、大型炉に付属する排ガス燃焼装置の一部改造を行い、炉内温度分布等の合成装置の基本的な特性の把握を行う。また、各種構造評価ならびに磁気特性評価を駆使し、還元・窒化プロセス条件の最適化を図る。広島大学は戸田工業とT&Tイノベーションズと強力に連携し、大量合成プロセス開発を目的とした基礎的データ取得のため局所排気装置および窒化処理装置を導入し、大量合成プロセスの実験に使用し、窒化鉄大量合成条件のデータを取得し、本テーマ推進に有効に使用する。

平成24年度では、前年度までに一部改良を行ってきた合成装置の更なる改良、ならびに、プロセス条件の最適化を行い、窒化鉄ナノ粒子を約10 g/バッチで合成可能な技術の構築を目指す。

研究開発項目③ 「バルク化技術」

研究開発項目①および研究項目②で得られた種々の窒化鉄ナノ粒子を用いて、簡易プレス成型

を基盤技術とした小型のバルク成型技術の構築に着手する。また、ナノ粒子の大型バルク化という世界初のチャレンジング・テーマに立ち向かうため、様々な成型手法をトライする。東北大学およびT&Tイノベーションズは、各々の再委託先の装置に最適な原料、分散、表面修飾の改良を行い、各機関に持ち込む。

研究開発項目④ 「評価・解析」

窒化鉄ナノ粒子およびそのバルク材料の高特性・高品位化を念頭として、局所磁化過程解析・磁区観察や電子顕微鏡観察技術等の独自技術を駆使し、得られた窒化鉄系材料の構造的知見および磁気特性を研究開発項目①～③の作製プロセス条件等へフィードバックする。また、材料計算科学の手法を用いて、磁石化にあたり窒化鉄系材料のポテンシャルを最大限活用できる指導原理の獲得を図る。

⑨-3-2 Nd-Fe-B 系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用した Nd 系磁石代替実用永久磁石の研究開発

研究開発項目「① Nd 系磁石を代替する新規磁石材料の探索」

本研究開発項目では、以下の各細目の実施計画に従って、新規組成または構造をもつ単一合金または金属間化合物からなる磁性材料、またはハード磁性材料をベースとして複合磁石を中心に実際に作製し、その磁気特性や組織観察を通してこれらの中から永久磁石として有望な材料を選定しその実用化の可能性を明らかにする。具体的には、新規な組成または構造を有する磁性材料を探索、ならびに既存の磁石材料なども含めてナノ組織化した複合磁石を平成23年度は探索の方向性を明確にし、材料の絞込みを行う。

・「①-1 成膜法による新規人工格子磁石材料の研究開発」《長崎大学担当》

Pulsed Laser Deposition (PLD) 法を用いた高速成膜により、Nd 系磁石を代替することが可能な新規磁石の創製を目指す。

平成23年度の事業においては、膜厚 10 μm 以上の等方性厚膜磁石を対象とし、

・代替磁石の設計

完全代替磁石である Sm-Co/Fe、完全代替に至る過程の半代替磁石と位置づけられる Sm-Co/Nd-Fe-B、さらには比較対象としての Nd-Fe-B/Fe 超多周期人工積層構造を計算機シミュレーションで設計する。

・ PLD 法による完全代替および半代替人工積層構造膜磁石の創製

を行う。上記完全代替及び半代替人工積層構造膜磁石は、積層周期を数 nm 以下まで減ずることにより、高温特性に優れた磁石になると期待される。このことは、高温で使用される (Nd, Dy)-Fe-B 磁石を開発磁石で代替する観点から極めて重要である。平成23年度には、保磁力の温度依存性を焼結 Nd-Fe-B 磁石の値 (0.6%/°C) の 2/3 (0.4%/°C) まで抑制した、完全代替あるいは半代替人工積層構造膜磁石を創製することを達成目標とする。

【平成24年度計画】

磁石材料探索マップに従い、200°C程度の高温における、積層構造磁石のナノ構造と磁気特性の関係を計算機シミュレーションにより明らかにし、積層構造磁石膜の高温でのポテンシャルを明らかにする。

磁石材料探索マップに従い、平成24年2月までに、保磁力の温度依存性を焼結 Nd-Fe-B 磁

石の値 ($0.6\%/^{\circ}\text{C}$) の $2/3$ ($0.4\%/^{\circ}\text{C}$) 以下まで抑制した、等方性 Sm-Co/ α -Fe 積層ナノコンポジット磁石を創製できたので、平成 24 年度は、 200°C において、等方性 Nd-Fe-B 厚膜磁石の $(BH)_{\text{max}}$ 超える人工積層構造膜磁石の創製を達成目標とする。

・「①-2 急凝固法による新規磁石材料の研究開発」《千葉工業大学担当》

本開発項目では、新しい磁石材料の探索を急凝固法により行う。新しい磁石材料としては、Fe, Coなどの磁性材料をベースとするFe系合金やCo系合金とする。まず、新しい磁石材料の候補であるFe, Coなどの磁性材料にTi, Zrなどの高融点金属を添加したFe系合金およびCo系合金およびB, Cなどの半金属軽元素を添加したFe系合金およびCo系合金をアーク溶解または高周波溶解により作製し、得られた合金の急凝固を行う。分析走査電子顕微鏡を研究室に新しく導入し、急凝固法で作製した試料が目標通りの組成の合金になっているか、また目標通りの組織が得られているかを調べる。

次に、急凝固法で作製した試料および急凝固法で作製した試料に熱処理を施した試料の構造と磁気特性の関係について調べる。急凝固法で作製した試料および急凝固法で作製した試料に熱処理を施した試料の磁気特性を調べた後、その試料の構造について研究室に新しく導入した卓上型X線回折装置で測定し、どのような組成の合金でどのような構造のときに高い磁気特性が得られるのかについて順次検討する。

以上の研究をもとに、研究開発項目①で目標とする新しい磁石材料の探索を急凝固法で行う。なお、平成23年度末での目標としては、「急凝固法による新しいFe系およびCo系新規磁石材料の探求」とする。なお、新規磁石材料としては $B_r > 0.5 \text{ T}$ または $H_{cj} > 0.5 \text{ MA/m}$ 以上を有するものを目標とする。

【平成24年度計画】

磁石材料探索マップに従い、これまでのFe系合金やCo系合金に加えてMn系合金、Bi-Mn系合金についても急凝固法により作製し、得られた試料の磁気特性と構造の関係について探索する。 $B_r > 0.5 \text{ T}$ または $H_{cj} > 0.5 \text{ MA/m}$ 以上を有するものを目標とする。

・「①-3 固化形成プロセス法による新規磁石材料の研究開発」《大阪大学担当》

本開発項目では、粉体工学および粉末冶金技術をもとに、新規な組成、組織、組み合わせを有する新規複合磁石材料の探索を行う。組成としてはソフト相とハード相を複合化した交換スプリング磁石およびハード磁性材料同士からなる複合磁石などを対象に、溶解プロセスでは困難な異種系複合化の効果についても明らかにするとともに新規な焼結・加工技術による異方性の付与など組織制御プロセス開発による高性能化を目指す。また、共電着などの手法を用いて、鉄またはコバルトを主要成分とした合金または金属間化合物を作成し、これらのハード磁性材料としての性能を評価する。

平成23年度ではソフト/ハード複合材料としてFe/Sm-Fe-N系およびFe/Sm-Co系、ハード/ハード複合材料としてSm-Fe-N/Sm-Co系を対象に、メカニカルミリングによる等方性磁石の複合化効果について、ミリング時間および組成が微細組織構造および磁気特性に及ぼす影響を明らかにし、複合磁石の高性能化に必要な組成および組織構造についての指針を得る。なお、この研究開発を行うために、アーク溶解装置および着磁器を新たに導入すると共に、既存のグローブボックスの改良を行う。

【平成24年度計画】

磁石材料探索マップに従い、前年度に得られた知見をもとに、Bi-Zn系およびBi-Mn

系低融点混合物を新たに作製し、これらをハード磁性材料単独、ソフト/ハード複合材料およびハード/ハード複合材料をメカニカルミリング法で混合することで、これらのメタルボンド磁石用の可能性を明らかにする。

・「①-4 TEMによる新規磁石の組成と構造の評価」《九州大学担当》

研究開発項目①-1～3において試作された新規磁石材料について、主に透過電子顕微鏡（TEM）を用いてナノレベルまでの詳細な構造ならびに組成解析を行い、保磁力等の磁気特性を効率よく発現させる組織制御への指針を得る。

平成23年度の事業においては主に、長崎大学で試作予定のPLD成膜試料および千葉工業大学で試作予定の急冷凝固薄帯試料について組成と構造を評価する。

非平衡状態相の形成を利用した新規磁石材料の開発に貢献できる種々の微細構造解析データを取得し、改善策を検討して開発元にフィードバックする。

【平成24年度計画】

引き続き、長崎大学で試作予定のPLD成膜試料および千葉工業大学で試作予定の急冷凝固薄帯試料について組成と構造を評価する。特に、人工積層磁性膜およびMnBiナノコンポジット急冷凝固薄帯試料の微細構造を詳細に解析する。これにより、非平衡状態相の形成を利用した新規磁石材料の開発に貢献できる種々の微細構造解析データを取得し、改善策を検討して開発元にフィードバックする。

研究開発項目「② Nd系磁石を代替する複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発」

本研究開発項目では、以下の各細目の実施計画に従って、既存のハード磁性材料新規組成および構造をもつ磁石材料を中心に探索を行う。平成23年度は探索の方向性を明確にし、材料の絞込みを行う。

・「②-1 非平衡状態相の形成による複合組織磁石化技術の研究開発」《大阪大学担当》

ナノ複合（交換スプリング）磁石である $(\text{Fe, Co})_3\text{B}/\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 、ハード磁性材料同士を組み合わせた $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{C}_x\text{N}_y/\text{Sm-Co}$ 系などの複合磁石を、配向して緻密化する上でのそれぞれの材料粉末の物理化学的性質を詳細に調べると共に、実際に複合化磁石を試作し異種材料間の磁氣的相互作用の明かにすることを目的としている。さらに、それら被複合化粉末の反応性を考慮した複合化プロセスを設計する。また、①で開発した新規な単一組成および構造を有する磁性材料の磁石化手法およびプロセスの設計開発も併せて行う。

平成23年度は、上述した典型的な複合磁石の試作までを行い、これらの磁石化に必要な知見を明らかにする。

【平成24年度計画】

研究開発項目①で得られた結果をもとに、Bi-Zn系およびBi-Mn系低融点混合物を機能バインダとして、ハード磁性材単独、ソフト/ハード複合材およびハード/ハード複合材からなるメタルボンド磁石を作製する上での、バインダと磁石粉末との反応性の検討やバインダを熔融させる温度等の最適化を行う。また、Zn金属による $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 磁石の高保磁力化（Zn/ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ の形成による）、MnBi相のバインダからの析出による高保磁力化（MnBi/ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 、MnBi/Fe/ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 、MnBi/ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x/\text{SmCo}_5$ 、等の形成による）を図る。

・「②-2 新規複合組織磁石製造技術の研究開発」《大阪大学、大同特殊鋼株式会社が共同で担当》

②-1で検討したソフトおよびハード磁性材料を組み合わせた複合磁石を磁石化する

ための装置開発とプロセス条件の最適化を行い、Nd-Fe-B系磁石に代替可能な永久磁石の材料面での検討を行う。また、①で開発した新規組成および構造を有する磁性材料についても、開発した手法を適用して磁石化を行い同様の検討を加える。

平成23年度は、上述した典型的な複合磁石の試作までを行い、これらの磁石化に必要な知見を明らかにする。(Fe, Co)₃B/Sm₂Fe₁₇N_xまたはSm₂Fe₁₇C_xN_y/Sm-Co系などの複合磁石を試作し、得られた磁石の性能を評価することで、装置およびプロセスの改善点を明らかにする。試作した複合磁石の性能としては、Br > 0.8 TまたはH_{cj} > 1.0 MA/m以上を有するものを目標とする。

【平成24年度計画】

開発項目②-1で得られた結果をもとに、大同特殊鋼株の設備を用いてZn/Sm₂Fe₁₇N_x、MnBi/Sm₂Fe₁₇N_x、MnBi/Fe/Sm₂Fe₁₇N_x、MnBi/Sm₂Fe₁₇N_x/SmCo₅、等のメタルボンド磁石等の試作を行うと共に、その作製条件を最適化する。

・「②-3 新規複合組織磁石の車載用としての実用評価」《日産自動車株式会社担当》

②-2で試作した複合磁石を中心にその温度減磁率、渦電流による自己発熱特性、錆びなどの環境耐久性などを詳細に調べ、当該永久磁石を駆動モータへ実装する上での課題を明らかにする。また、得られた知見を②-1および②-2の研究開発項目へフィードバックし、より優れた特性の永久磁石の開発に資する。

平成23年度は、雰囲気加熱炉を導入し、試作した永久磁石の実用評価するためのシステムを整備する。

【平成24年度計画】

開発項目②-2で試作予定のZn/Sm₂Fe₁₇N_x、MnBi/Sm₂Fe₁₇N_x、MnBi/Fe/Sm₂Fe₁₇N_x、MnBi/Sm₂Fe₁₇N_x/SmCo₅、等のメタルボンド磁石に対して、前年度に整備した実用評価システムを用いてNd磁石代替材料としての可能性および課題を明らかにする。

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発に係る材料製造技術ならびに触媒開発技術の確立を図るため、①セリウム使用量を低減した微粒子触媒材の開発、②セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能材の開発、③ガソリン車排ガス浄化触媒の開発、の各項目について研究開発を実施した。

- ・ 研究開発項目① セリウム使用量を低減した微粒子触媒材の開発（名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス担当）では、微粒子合成技術の開発と、希薄高分散した複合微粒子の組織制御を行い、セリウム量を低減もしくは不使用材による触媒材の高度化を図った。
- ・ 研究開発項目② セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能材の開発 《名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス担当）では、①で開発した微粒子材料をもとに、ガソリン車排気処理に必須となっている酸素貯蔵能（OSC）材への応用を図り、セリウム量低減もしくは不使用としてもOSC性能を保持しうる新規OSC材の実現を検討した。

- ・ 研究開発項目③ ガソリン車排ガス浄化触媒の開発（名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテド、アドマテックス 担当）では、研究項目①と②で得られた成果を統合し、ガソリン車で実用化するための触媒改良と触媒大量調製技術を検討し、その浄化性能評価を実車レベルで行い、実用化可能性検討を推進した。

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次機能制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術を開発するため、東北大学・熊本大学・名古屋大学・北海道大学・宮城県産業技術総合センター・第一稀元素化学工業・本田技術研究所・ルネッサンス・エナジー・リサーチがそれぞれ共同実施契約を結び、平成 24 年 2 月までに最終目標を実現するため、次の研究開発項目を実施する。

研究開発項目① 材料設計 （実施機関：東北大学、本田技術研究所）

セリアは自動車触媒において自らを酸化還元させることで、酸素の吸蔵放出を安定的に行う役割を担っている。また、貴金属自体を安定化させて貴金属シタリングを防ぐ。そのためセリアの高機能化のためには、セリアが本来持つ機能を分子・量子レベルから解明することが必要である。そこで、本項目では、理論シミュレーションを用いた研究開発支援、セリア高機能化の原理原則の解明に不可欠なセリアあるいは代替酸化物粒子のキャラクタリゼーションを実施する。また、開発した材料のキャラクタリゼーション、シタリング特性、酸素吸放出特性を迅速に実施できる体制を整えることで、開発研究を加速化し、合わせて、理論シミュレーションと開発研究の橋渡しを行う。

研究開発項目② セリウム低減のためのシーズ技術開発 （実施機関：東北大学(再委託先：産業技術総合研究所)、名古屋大学、熊本大学、北海道大学、ルネッサンス・エナジー・リサーチ(再委託先：八戸工業高等専門学校)）

セリウム低減の方法としては、各種ナノテク手法によるセリアの高機能化やセリアと他材料の複合化による高性能化、高耐熱性の γ -アルミナの適用等の検討を実施し、その製造方法を確立するとともに、触媒として評価し、実用化につなげる。また、非セリア系新規材料として、フェライト(Fe)系材料、鉄シリカ系材料、あるいはそれらのセリアとの複合ナノ粒子材料、活性金属としてはPt、Pdよりも安価な銀を選択することで希土類を全く使用しない耐熱性燃焼触媒、種々の新規ペロブスカイト系酸化物、の開発を行う。また、セリアと担体間の相互作用が変化しセリアのポテンシャルをより大きく引き出すための超臨界ドライ担持法およびマイクロ波固液・超音波法を利用したプロセッシング技術の開発を行う。また、第一スクリーニング、第二スクリーニング、実排ガス・実機による性能評価を経て、実用性を評価する。さらに開発された新材料のコスト評価を行い、実用性に見合った代替大量生産技術を確立する。

研究開発項目③ 実用触媒の観点に基づく評価指針と実用化の検討（実施機関：本田技術研究所）

本田技術研究所が、社内で培ってきた触媒研究開発のノウハウを活かして、当該プロジェクトで開発された新規セリア系あるいは非セリア系材料を触媒化し、モデルガスによる性能評価により現行量産材との性能比較や特性の把握を実施し、開発材料の位置づけを明確にする役割を担う。また、併せて実用触媒を使用する立場から、本研究開発の実施メンバーに対し実用化の課題やニーズを発信し、材料開発の方向性を示し牽引する。本研究開発目標をクリアした開発材料に関しては、エンジン単体ベンチでの実排ガス試験により、実用化の観点から評価を実施する。

⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

(1) 高品質グラフェン合成技術の開発

グラフェンの高品質化に適したプラズマ源の探索とプラズマCVD（気相成長法）の最適化、生成基板である銅箔の表面特性向上などにより、グラフェンの高品質化を図る。ポリイミド樹脂フィルム基板に積層した銅薄膜を基材としたグラフェンの合成技術を開発する。高品質グラファイトフィルムや金属基板上の多層グラフェン膜を用いて、層間剥離法やエッチングレス製造方法による高品質グラフェン膜製造法を開発する。ドーピングやカーボンナノチューブなどとの複合化によるグラフェンの低抵抗化を実現する。

(2) ロール to ロール大量合成技術の開発

幅 600mm、連続合成速度 0.6m/分のロール to ロール合成技術を開発する。さらに基板表面の前処理・グラフェン合成・グラフェン合成後の後処理を連続して行うため、各プロセス室にそれぞれ基板加熱機構及びプロセスガス導入ラインを設置した、グラフェン連続合成装置を開発する。ここでは均質なプラズマ源として大面積化が容易なマイクロ波表面波プラズマを用いる。

(3) 透明フィルムの製造技術の開発

グラフェンのパターン形成技術としてレーザーエッチング法を開発する。また銅箔上に形成させたグラフェンをレーザーにより、透明基板上に剥離・転写する方法の開発、さらにITOで一般的で、低コストなケミカルエッチング法を化学的に安定なグラフェンのパターンニング技術として適用する手法を開発する。また、銅箔に合成したグラフェンのPETフィルムへのロール to ロール転写法を開発し、グラフェン透明フィルムの製造技術の開発を行う。

(4) 透明導電性フィルムの性能評価

透明導電性フィルムの適用先としての、タッチパネルに要求される電氣的、光学的特性、及び耐環境性、耐摺動特性、信頼性等の評価を行う。さらにグラフェン透明電極を利用した抵抗膜式タッチパネルの試作を行い、ITO透明導電膜代替材料としてのグラフェンの可能性を実証する。

2.1.1 各研究開発の全体スケジュール

研究開発項目毎の全体スケジュールを表Ⅱ-2-1～表Ⅱ-2-5に示す。

表Ⅱ-2-1 ⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

事業項目	平成22年度			
	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期
①窒化鉄系材料の合成とその基礎特性				
①-1 直接合成技術		熱分解・還元法の合成条件最適化		
		金属アミド化合物・金属アジ化物を用いた合成		
		鉄-窒素含有錯体の合成と粒子合成		
①-2 間接合成技術		非磁性修飾酸化鉄ナノ粒子の還元・窒化		
		酸化鉄ナノ粒子の還元・窒化		
		シリカ被覆鉄ナノ粒子の窒化		
①-3 構造・磁気物性評価		装置の導入と立ち上げ		
②R-Fe-N磁石の高性能化に向けた要素技術開発		装置の導入と立ち上げ		
②-1 R-Fe-N系磁石における組織最適化技術に関する研究		粉末の組織形態調査		
			メタルボンド磁石作製	
			バインダ材料の検討と界面組織検討	
②-2 バインダ用最適金属材料の研究		最適合金組成の検討		
		粉末粒径の検討		
			メタルボンド磁石の作製	
②-3 複合場焼結技術によるR-Fe-N粉末の焼結			焼結条件の最適化	
②-4 冷間圧縮せん断法を用いたSm-Fe-N磁石粉末の固化成形技術の確立		冷間圧縮せん断法による固化成形技術の確立		
		最大エネルギー積で2.0MJGOe以上の高性能なSm-Fe-N磁石の作製		
②-5 超高压法による新規R-Fe(-N)系化合物の合成		超高压合成による新材料創製		
		結晶構造解析と磁気的性質の評価		
		超高压窒素雰囲気セルの開発		
③原理指針獲得				
③-1 新規磁石の高性能化に関する理論的		第一原理計算による高磁気異方性Fe-N系材料の提		
③-2 ナノスケール微細構造解析		Sm-Fe-N磁石のナノスケール微細構造解析		
		新規磁石材料のナノスケール微細構造解析		
④モータの評価・解析				
④-1 新規磁石および希土類磁石を用いたモータの特性比較		数値計算による特性の把握		
④-2 新規磁石に適したモータ構造に関する検討			モータ構造最適化	
④-3 磁石モータの試作と実証試験			試験装置の導入と試験	

表Ⅱ-2-2 ⑨-3-1 窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

事業項目	平成23年度	平成24年度		
	H23 第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期
① 分散・表面修飾の基礎技術	導入した装置を用いた単分散化の指針検討			
①-1 分散技術				指針検討
①-2 表面修飾技術	導入した装置を用いた分散剤・カップリング剤の			指針検討
② 大量合成技術		目標: 約10g/B		
③ バルク化技術		金型成形物の試作・再現性向上		
③-1 簡易小型成型				
③-2 表面修飾・低温焼結技術	導入した装置を用いた複合場焼結の			指針検討
③-3 造粒・成型手法		疑似ナノ粒子を用いた予備検討		
④ 評価・解析		LLGシミュレーション		
④-1 計算科学的手法				
④-2 局所磁化過程計測		装置の詳細設計		
④-3 ナノスケール微細構造解析		大量合成した試料の形状・組成・結晶		構造等評価

表Ⅱ-2-3 ⑨-3-2 非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

事業項目	平成23年度				平成24年度	
	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期
① Nd系磁石を代替する 新規磁石材料の探索						
①-1 成膜法による新規人工 格子磁石材料の研究開発						
計算機シミュレーションによる 人工積層構造の設計						
PLD法による上記人工積層 構造膜磁石の創製						
①-2 急凝固法による 新規磁石材料の研究開発						
急凝固法による 新規磁石材料の作製						
新規磁石材料の 構造と磁気特性評価						
①-3 固化形成プロセス法に よる新規磁石材料の研究開発						
メカニカルミリング法による 等方性複合磁石の創製						
磁場中配向固化形成プロセス による異方性複合磁石の創製						
①-4 TEMIによる新規磁石の 組成と構造の評価						
PLD成膜試料に関する 組成と構造を評価						
急凝固薄帯試料に関する 組成と構造を評価						
② Nd系磁石を代替する複合磁石の 組織制御および成型技術の研究開発						
②-1 非平衡状態相の形成による 複合組織磁石化技術の研究開発						
磁石化プロセス技術の 研究開発						
②-2 新規複合組織磁石製造 技術の研究開発						
磁石化プロセス技術を用いた 複合磁石等の作製						
②-3 新規複合組織磁石の 車載用としての実用評価						
試作された磁石の自己発熱、 耐久性等の評価						

表Ⅱ-2-4 ⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス
浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

研究開発項目	平成22年度	平成23年度			
		第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期
①セリウム使用量を低減した触媒微粒子材の開発					
①-1セリウム低減微粒子材の基本原理確立		新材料の原理確立、ラボ合成技術確立 (名工大、ノリタケ、アドマテックス)			
①-2セリウム低減微粒子触媒材の合成技術		製造技術基礎合成工程の確立 (ノリタケ、共立マテ、アドマテックス、名工大)		改良・最適化	
①-3セリウム不使用微粒子触媒材の合成技術確立		新規候補材料の探索 (ノリタケ、共立マテ、アドマテックス、名工大)		比較検討	
② セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能材の開発			第1候補材	第2候補材	最終候補材
②-1複合ナノ粒子のOSC触媒材化と開発		OSC材の性能向上、触媒化 (ノリタケ、共立マテ、アドマテックス、名工大)			
②-2OSC触媒材の最適化		性能評価および触媒材として最適化 (名工大、ノリタケ、共立マテ、アドマテックス)			
②-3白金担持OSC触媒開発		白金添加系の新触媒材の評価と候補材選定 (名工大、ノリタケ、アドマテックス)			
②-4セリウム不使用材のOSC評価と開発		不使用材の性能評価 (名工大、ノリタケ)			
③ ガソリン車排ガス浄化触媒の開発		触媒化工程の検討、触媒の材料耐久性評価			
③-1実OSC触媒技術の開発		(名工大、ノリタケ、共立マテ、アドマテックス)			
③-2プロトタイプ触媒の試作		触媒性能評価用プロトタイプ作製			
③-3プロトタイプ触媒の評価		(名工大、共同研究企業、ノリタケ、アドマテックス)			
		(同上)	三元活性評価、新触媒基礎技術提案		

表Ⅱ-2-5 ⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術

	平成23年											平成24年		
	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	
プロジェクトフェーズ	第一期 基礎固め			第二期 材料改良			第三期 候補材選定			第四期 実用化検討				
イベント	★ キックオフ		★ 進捗整合会			★ 年度中間まとめ			★ 進捗整合会			★ 最終まとめ		
セリア系および非セリア系材料基礎研究	標準セリア準備		セリア特性評価手法設定		特性把握		標準セリアに対する特性位置付け（OSC等）開発の方向性整合			改良			-30%セリア材提案	
触媒化検討	触媒化手法設定		標準触媒特性把握			触媒特性評価			触媒改良					
実用化検討	現状課題整理		ものさし構築（材料-触媒関連）			実用化課題洗い出し								

表Ⅱ-2-6 ⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

	平成23年度				最終目標
	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	
① 高品質グラフェン合成技術の開発					低抵抗化と高透過率化 シート抵抗 500Ω/sq、 可視光平均 透過率 87%
①-1 高品質グラフェンの工業的製造基盤技術の開発	マイクロ波プラズマの検討	RFプラズマの検討	インバータープラズマの検討	リモートプラズマの検討	
①-2 樹脂基材へのグラフェン合成		合成	条件最適化		
①-3 グラフェンの剥離技術(物理的層間剥離法)	高分子選定	熱処理条件最適化	特性評価 層間剥離	フィルム特性評価	
①-4 グラフェンのプラズマ還元技術	各種プラズマ	の検討	条件の精緻化 特性評価		
①-5 高品質グラフェンのさらなる導電性向上		ドーピング条件の精緻化 特性評価	カーボン除去 複合化		
② ロールtoロール大量合成技術の開発	設計	試作	試作	性能評価	ロールtoロール化 移動速度 1cm/s上、 シート幅 600mm以上
③ 透明フィルムの製造技術の開発					ロールtoロール連続転写法 線幅0.3mm 5m以上の 連続転写
③-1 グラフェン膜のパターニング方法	ナノ秒・フェムト秒レーザーエッチングシステム		条件探索		
③-2 ロールtoロール連続転写法の開発	転写装置の導入	接着剤選定			
④ 透明導電性フィルムの性能評価			タッチパネル試作 性能評価		抵抗膜式 タッチパネルの試作

2.1.2 予算

開発予算の推移を表Ⅱ-2-7に示す。

表Ⅱ-2-7 予算実績

(百万円)

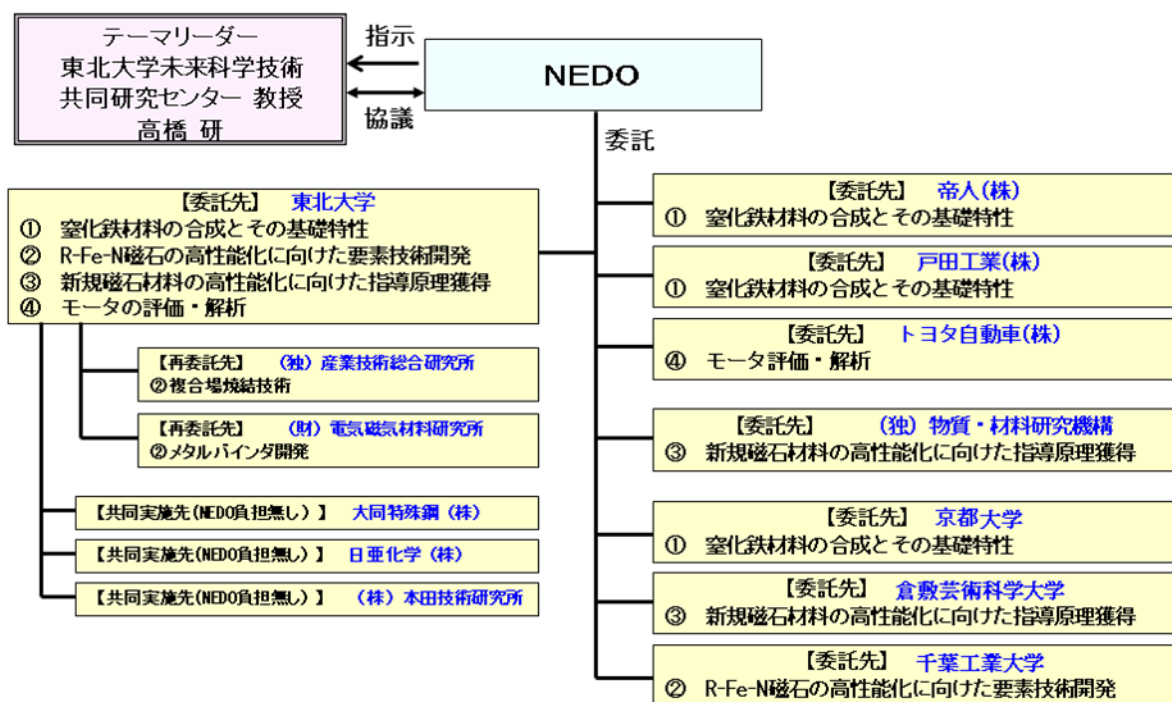
開発項目、鉱種 (用途)	実施先 (青字：テラダ-所属機関)	平成21年度 (補正予算)	平成22年度 (補正予算)	平成23年度	平成24年度	合計
⑨-1 Nd、Dy (永久磁石)	帝人、戸田工業、トヨタ自動車、物質・材料研究機構、京都大学、倉敷芸術科学大学、千葉工業大学、 東北大学	(900)				900
⑨-3-1 Nd、Dy (永久磁石)	T&Tイノベーションズ、戸田工業、秋田大学、京都大学、倉敷芸術科学大学、 東北大学 、広島大学			180	20	200
⑨-3-2 Nd、Dy (永久磁石)	日産自動車、 大阪大学 、九州大学、千葉工業大学、長崎大学			90	10	100
⑩-1A Ce (排ガス助触媒)	アドマテックス、ノリタケカンパニーリミテド、 名古屋工業大学		(342)			342
⑩-1B Ce (排ガス助触媒)	第一稀元素化学工業、本田技術研究所、ルネッサンス・エナジー・リサーチ、宮城県産業技術総合センター、熊本大学、 東北大学 、名古屋大学、北海道大学		(755)			755
⑩-2 In (透明導電膜)	技術研究組合単層CNT融合新材料研究開発機構(アルバック、尾池工業、カネカ、大日本印刷、東レ、 産業技術総合研究所)		(1,400)			1,400
合計		(900)	(2,497)	270	30	3,697

2.2 研究開発の実施体制

本研究開発は、それぞれ平成 21 年度（研究開発項目⑨-1）、平成 22 年度（研究開発項目⑩-1、⑩-2）および平成 23 年度（研究開発項目⑨-3）に公募が行われ、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）から研究開発実施者が決定され、共同研究契約等を締結し、委託事業として開始した。

また、各研究体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、各研究体には研究開発責任者（テーマリーダー）を置き、その下に研究者を可能な限り結集して効果的な研究開発を実施した。

研究開発項目毎の実施体制を図Ⅱ-2-1～図Ⅱ-2-6 に示す。



図Ⅱ-2-1 ⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

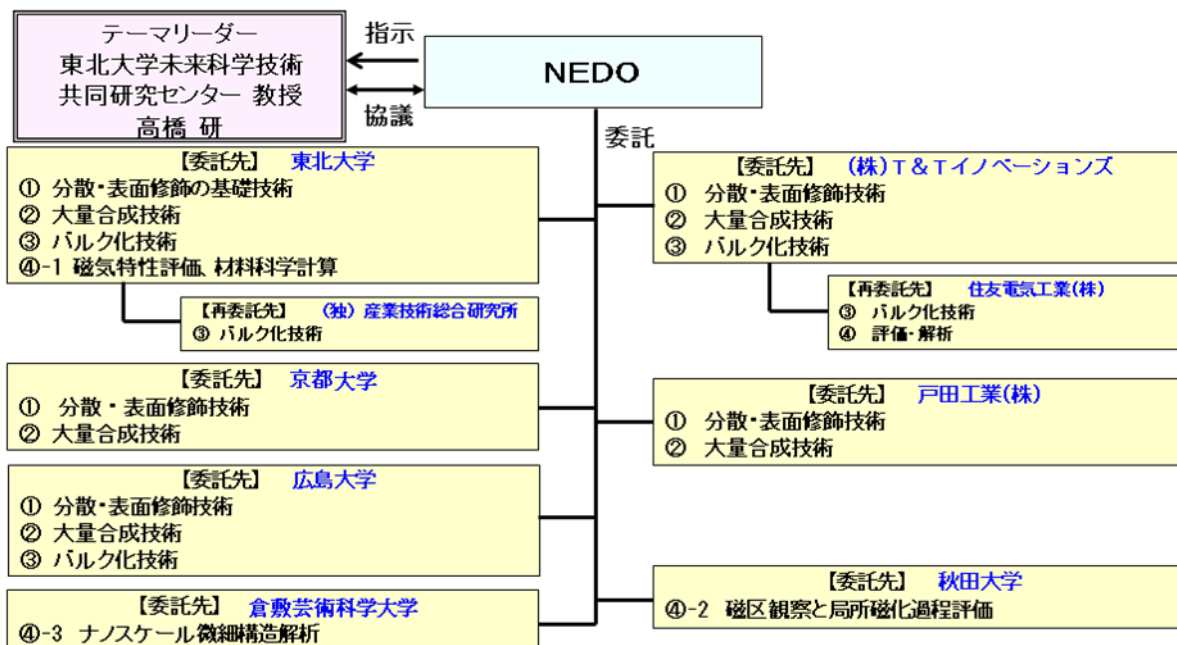


図 II-2-2 ⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発
 ／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

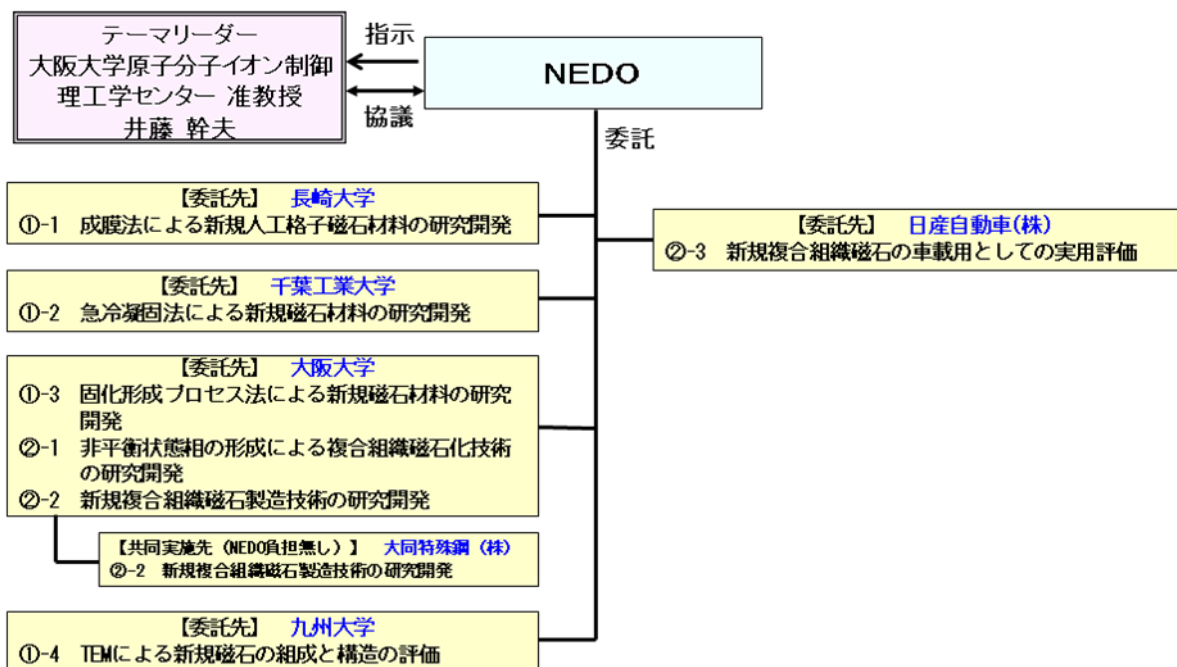


図 II-2-3 ⑨-3-2 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発
 ／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

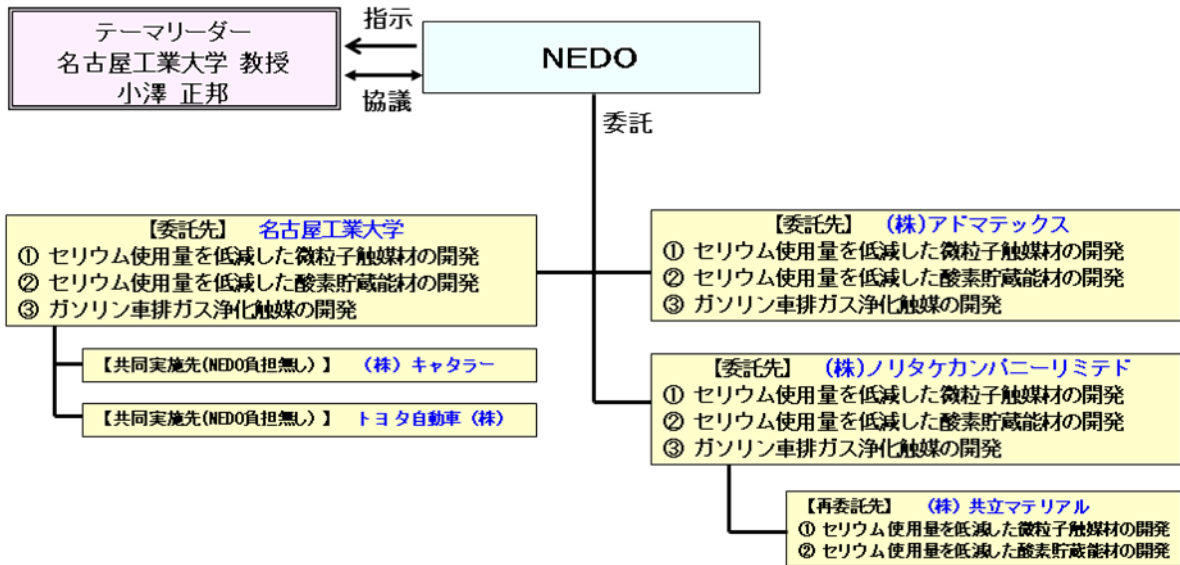


図 II-2-4 ⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

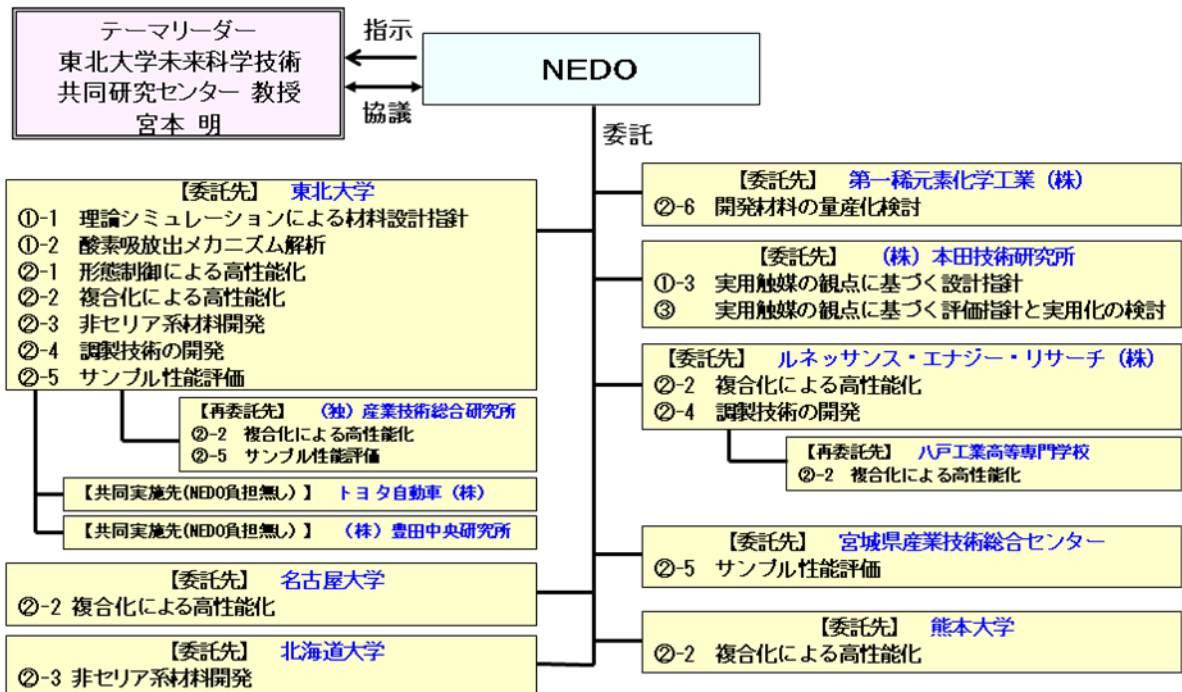
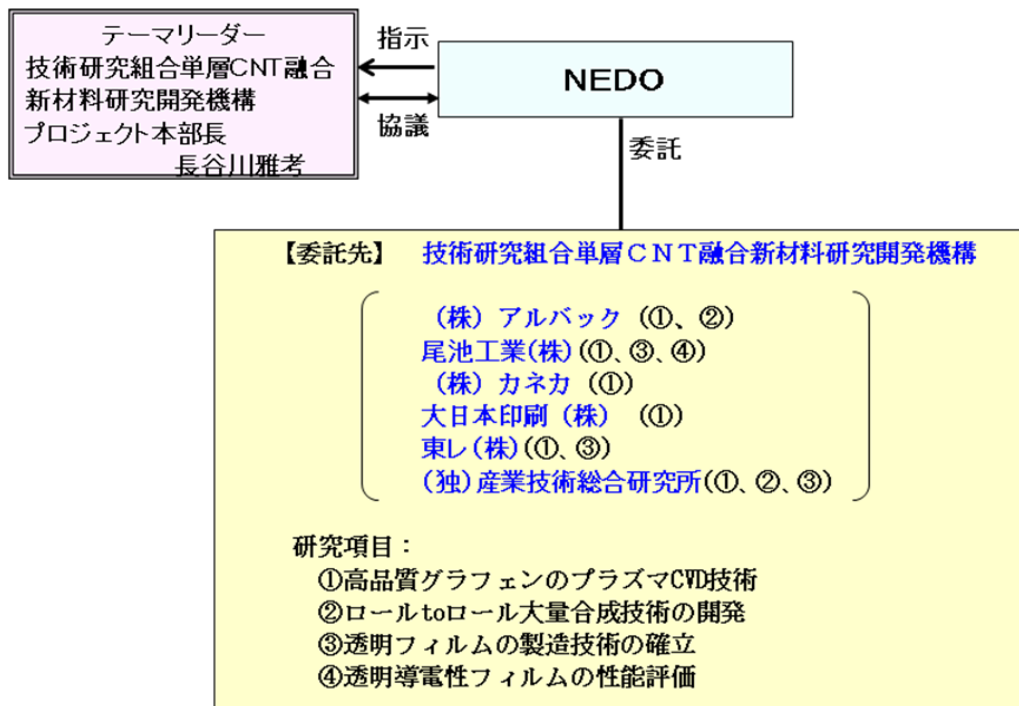


図 II-2-5 ⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発



図Ⅱ-2-6 ⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

2.3 研究開発の運営管理

研究開発全体の管理・執行に責任を有するNEDOは、経済産業省および研究開発責任者と密接な関係を維持しつつ、プログラムの目的および目標、並びに、本研究開発の目的および目標に照らして適切な運営管理を実施した。具体的には、定期的で開催される進捗報告会に出席して進捗を確認するとともに、実用化に向けたアドバイスを行った。また必要に応じて、各テーマ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た。

2.4 研究開発成果の実用化に向けたマネジメント

研究開発成果の実用化を促進するため、「元素戦略との合同シンポを通じて研究成果を国内外へ発進」、「知財管理」を実施した。

2.4.1 元素戦略／希少金属代替材料開発 合同シンポジウム

本研究開発プロジェクトは、文部科学省の元素戦略プロジェクトと研究開発推進にあたり、お互いの研究開発成果・課題等について議論した。さらに、得られた研究開発成果については毎年合同シンポジウムを開催し、研究成果を国内外へ発進した。

主催：元素戦略／希少金属代替材料開発 合同戦略会議
 共催：内閣府、文部科学省、経済産業省、環境省、(独) 科学技術振興機構、
 (独) 新エネルギー・産業技術総合開発機構

研究開発項目⑨⑩に対するこれまでの実績を、表Ⅱ-2-8に示す。

表Ⅱ-2-8 合同シンポジウム開催状況

	年月日	場 所
第5回	平成23年3月4日	笹川記念会館 国際ホール
第6回	平成24年2月29日	東京大学 安田講堂

2.4.2 知財管理

プロジェクト開始にあたっては、事前調査として、平成18年度および平成20年度に希少金属のリスク調査の一環でどのような研究が行われているかを書誌及び特許情報で検索（特許電子図書館及びGoogleScholar BETAをキーワード検索。平成21年2月に実施）を行っている。これにより技術の確立状況を把握しプロジェクトの設計に反映させている。

プロジェクト開始時には、各プロジェクト毎に参画機関で共同開発契約もしくは秘密保持契約を締結して進める。この中で、知財の考え方、知財の配分、特許出願の判断、制約事項や、対外研究発表等の約束事（共願者への事前の相談、特許出願後の発表）等について、どのように扱うかを決め文書により規定している。

本研究の材料開発、製造プロセス開発から生み出される知財については、企業・大学・研究機関の技術をノウハウとして蓄積することを優先し、特許化については相談のうえ進めることとした（特許化を進めると技術の公開につながる。公開されても技術として確保できる特許化を進める）。

プロジェクト期間中の知財の現況は、平成22年度実施の希少金属のリスク調査の一環でリスク調査で絞り込んだ20鉱種についてシーズ研究調査を実施し把握に努めている。

3. 情勢変化への対応

本章 1.1.1 で記述したとおり、本研究開発の研究対象であるレアメタル・レアアースについては、供給に対する不安が現実のものとなってきている。この情勢に官民挙げて緊急に対処するため、平成 22 年度補正予算（第 1 号）による対策に加え、レアアース日米欧三極 R & D ワークショップの開催等を通じて、レアメタルの安定供給確保に関する研究開発及び実用化・事業化の加速を行った。

東日本大震災の影響を考慮し、⑨-1 の契約期間を 2 ヶ月間延長、⑩-2 の契約期間を 1 ヶ月間延長した。

研究開発項目⑨-3 は、平成 24 年 10 月から、経済産業省事業「次世代自動車向け高効率モータ用磁性材料技術開発」が開始された。同事業により研究開発項目⑨-3 の目的は達成されると判断し、研究開発項目⑨-3 の終了時期である平成 27 年 9 月を平成 24 年 9 月に変更した。

3.1 レアアースの供給量削減に対する対応

レアアースの供給量削減に対する対応を表 II-3-1 に示した。

表 II-3-1 レアアースに関する情勢変化と対応

情勢	対応
2010年7月8日 ・レアアース生産国より2010年下期輸出許可枠の大幅削減発表 （以降レアアース入手難と価格高騰へ） 2010年9月 ・レアアースの産出国からの対日輸出stop 2010年12月28日 ・レアアース生産国より2011年上期輸出許可枠の大幅削減発表	1. 2010年度補正予算対応 ・「希少金属の代替・削減技術開発(助成/委託)…120億円」助成事業 ・新規テーマ追加(2010～2011年の研究期間) 短期間での実用化/事業化を目指す 材料開発、リサイクル技術開発等…59件 委託事業 ・既存のテーマの研究開発加速のための予算追加 ・新規のテーマ追加(2010～2011年の研究期間) 自動車触媒向けセリウム…2件 透明電極向けインジウムを代替するグラフェン…1件
2011年2月 ・レアアース生産国内の企業の集約を進める （5年間で100社→20社程度） 2011年3月 ・採掘、生産に対し環境基準を策定 （10月～施行） 2011年5月 ・レアアース生産国南部は80%を3社に集約	2. レアアース日米欧三極R&Dワークショップの開催 ・レアアース安定供給確保を目的に、経済産業省/NEDO、欧州委員会、米国エネルギー省と共同で開催。 ・第1回 2011年10月4日 米国 ワシントン ・第2回 2012年3月28日 日本 東京

3.2 レアアースの安定確保に関する緊急対策（平成 22 年度補正予算）

国は、レアアースの安定供給確保に関する緊急対策として平成 22 年度補正予算にトータル

1,000億円の対策を実施した。技術開発による「代替化」と「使用量低減」の加速、国内でのリサイクル推進、ユーザー産業の供給リスクへの耐性向上、世界の鉱山の権益確保、リスクマネー供給機能強化、資源国との関係強化等の総合対策が講じられている。

- ① 希少金属（レアアース等）の代替・削減技術開発 … 120億円
技術開発による「代替化」と「使用量低減」の加速
- ② レアアース等利用産業等設備導入事業 … 420億円
レアアース等の輸入量変化に大きく影響されない産業構造を形成するために、使用量削減のための設備・プロセス導入、国内でのリサイクル設備導入等
- ③ レアアース鉱山開発加速化資源国協力事業 … 20億円
日本企業が参加買する海外レアアース鉱山（カザフ、ベトナム等）の開発加速
- ④ 独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構出資金 … 300億円
政府によるJOGMECへの出資等によりレアアース鉱山の開発、権益確保を行う

となっており、このうち NEDO では①「希少金属（レアアース等）の代替・削減技術開発」（図Ⅱ-3-1 参照）の事業を推進した。希少金属代替材料開発プロジェクトの研究開発項目⑩もこの対策に含まれている。

希少金属（レアアース等）の代替・削減技術開発 【対策本文Ⅱ-2-(1)】

担当課：製造産業局
非鉄金属課

【第一次補正予算額：120億円】

事業の内容	事業イメージ
<ul style="list-style-type: none"> ○ 希少金属は、電気自動車等のモーター用の強力な磁石、デジカメなどの光学レンズ、フラットディスプレイの透明電極などに用いられ、我が国が強みを有する先端産業を支えている。 ○ また、希少金属を使った高性能触媒の国内生産は、世界的にも厳しい排ガス規制のクリアを可能とし、自動車産業の高い競争力を維持することにつながっている。 ○ 現在、我が国はレアアース等の供給を特定国に依存しており、レアアース等の調達環境も急速に悪化している。 ○ このため、レアアース等の輸入量の変化に大きく影響されない産業構造を形成することが急務であることから、レアアース等の使用量を低減する技術や代替物質の実用化を加速する。 	<p>1. レアアース等代替・削減を加速するための「希少金属代替技術開発プロジェクト」の加速</p> <ul style="list-style-type: none"> ・透明電極インジウム代替（酸化亜鉛、グラフェン） ・超硬工具タングステン代替（炭化チタン） ・ガラス精密研磨用セリウム代替（酸化ストロンチウム鉄） etc <div style="display: flex; justify-content: space-around;"> <div style="border: 1px solid blue; padding: 5px; width: 45%;"> <p style="text-align: center; color: blue;">セリウム (Ce) レアアース</p> <p>液晶ディスプレイ等用ガラス精密研磨等に使用</p> <p style="text-align: center;">精密研磨等</p> </div> <div style="border: 1px solid blue; padding: 5px; width: 45%;"> <p style="text-align: center; color: blue;">インジウム (In) レアアース</p> <p>薄型テレビ用透明電極に使用</p> <p style="text-align: center;">透明電極</p> </div> </div> <div style="display: flex; justify-content: space-around; margin-top: 10px;"> <div style="border: 1px solid blue; padding: 5px; width: 45%;"> <p style="text-align: center; color: blue;">セリウム (Ce) レアアース</p> <p>自動車の排ガス浄化用触媒に使用</p> <p style="text-align: center;">排ガス浄化触媒</p> </div> <div style="border: 1px solid blue; padding: 5px; width: 45%;"> <p style="text-align: center; color: blue;">タングステン (W) レアアース</p> <p>超硬工具に使用</p> <p style="text-align: center;">切削工具</p> </div> </div>
<p style="text-align: center; border: 1px solid blue; padding: 2px;">条件（対象者、対象行為、補助率等）</p> <ul style="list-style-type: none"> ○ 1. レアアース等代替・削減を加速するための「希少金属代替技術開発プロジェクト」の加速 <div style="border: 1px solid blue; padding: 5px; margin: 5px 0;"> <p style="text-align: center;">国 → 交付金 → NEDO → 委託 → 産学官連携研究</p> </div> <ul style="list-style-type: none"> ○ 2. 希少金属代替・削減技術実用化への集中支援 <div style="border: 1px solid blue; padding: 5px; margin: 5px 0;"> <p style="text-align: center;">国 → 交付金 → NEDO → 補助金 2/3 → 民間企業</p> </div>	<p>2. 希少金属代替・削減技術実用化への集中支援</p> <p>レアアース等の供給不足に直面する民間企業が緊急・集中的に取り組む、生産現場などでの代替・削減・再生技術開発に対し、公平・中立な評価により絞り込んだ実用化技術開発を支援する</p> <p><想定されるテーマ></p> <ul style="list-style-type: none"> ・非セリウム汎用研磨剤利用による研磨工程最適化技術開発 ・光学レンズ用ランタンの使用量低減製造技術開発 etc.

図Ⅱ-3-1 希少金属（レアアース等）の代替・削減技術開発の概要
（経済産業省 平成22年10月）

3.3 レアアース日米欧三極R&Dワークショップの開催

レアアース安定供給確保を目的に平成23年10月、米国で行われた第1回三極ワークショップに引き続き、第2回三極ワークショップを平成24年3月、日本において開催した。経済産業省とNEDO、欧州委員会、米国エネルギー省と共同で開催するもので、三極政府関係者、関連の研究者及び産業界の代表が参加し、レアアースの代替・削減に関する研究開発政策や、資源開発動向、リサイクル等の議論を行い、現在のレアアース市場が直面している困難な局面を技術によって解決する可能性を広げた。

これまでの実績を、表Ⅱ-3-2に示す。

表Ⅱ-3-2 レアアース日米欧三極ワークショップの開催状況

	開催日	開催場所
第1回	平成23年10月4日	米国 ワシントン
第2回	平成24年3月28日	日本 東京 学士会館

2. (1) 研究開発関連業務 (イ-1) 研究開発の実施

6 ナショナルプロジェクトを適切に実施する



具体的なマネジメント上の仕組みと工夫②

我が国でレアアース消費国間の国際ワークショップを開催

2012年3月28日東京において、NEDOが中心となり経済産業省、米国エネルギー省、欧州委員会やカナダ、豪州の専門家が集まり、レアアースの代替・削減・リサイクルに関する国際ワークショップを開催。日・米・欧の三極を中心に政策や研究開発・資源開発動向に関して情報交換し、今後の方向性や連携の可能性について議論を行った。



日・米・欧の連携を確認
左からハンス・ディートマール・シュヴァイスグート駐日欧州連合大使、枝野幸男経済産業大臣、スティーブン・チュー米国エネルギー省長官



2012年3月28日、EU-Japan-US Workshop on Critical Materials R&Dを日本で開催



開会の挨拶をするNEDO古川理事長

B-10

図Ⅱ-3-2 日米欧三極ワークショップ (NEDO 平成24年3月)

⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発

Ⅲ. 研究開発の成果について

1. 事業全体の成果

1. 1 研究開発内容

⑨-1

資源枯渇に脅かされない至極ありふれた元素である鉄と窒素を主原料とすることにより脱希少金属化を可能とさせ、現行のNd-Fe-B系磁石の特性を凌駕するポテンシャルを持つ高飽和磁束・高磁気異方性新規磁石材料の探索を行う。鉄-窒素系化合物として窒化鉄系材料と希土類(R)-Fe-Nに着目し、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析と磁気特性評価を通し、窒化鉄の所望相の合成技術指針の獲得とR-Fe-Nのバルク化技術の構築を図る。永久磁石をはじめとする磁性材料分野において実績が豊富な東北大学を中心とし、①「窒化鉄系材料の合成とその基礎特性」、②「R-Fe-N磁石の高性能化に向けた要素技術開発」、③「新規磁石材料の高特性化に向けた指導原理獲得」、④「モータ評価・解析」、の4つの研究項目を設定し、本研究開発成果の最終ユーザとなる自動車会社との連携を図りつつ、産官学連携のもと効率的かつ強力に推進する。

⑨-3-1

⑨-1で推進してきた鉄-窒素系化合物のうち、特に、純2元素の $Fe_{16}N_2$ 相窒化鉄に着目し、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析および磁気特性評価を通して、窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術の獲得とバルク化技術の構築を図る。①「分散・表面修飾の基礎技術」、②「大量合成技術」、③「バルク化技術」、④「評価・解析」、の4つの研究項目を設定し、本研究開発成果の最終ユーザとの連携を図りつつ、産学官連携のもと効率的かつ強力に推進する。

開発スケジュールと最終目標値

開発名称	2010	2011	2012	最終目標値
⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究	窒化鉄系材料の合成とその基礎特性評価	→		窒化鉄系材料の開発に対して、 ・出来る限り早期に80%以上の Fe ₁₆ N ₂ 相からなる微粒子を作製し、高性能磁石化に資する基本特性を確認する。 ・磁石化に向けて、より保磁力を高める磁性粉末の開発指針を得る。 R-Fe-N 系材料の開発に対して、 ・モータ用磁石としての実用を考え、保磁力20kOe程度を目標とする。
	R-Fe-N磁石の高性能化に向けた要素技術開発	→		
	新規磁石の原理指針獲得	→		
	新規磁石によるモータの評価・解析	→		
⑨-3-1Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築			分散・表面修飾の基礎技術	・窒化鉄ナノ粒子を約10g/バッチで合成可能な技術を構築する。 ・窒化鉄ナノ粒子の分散・表面処理により全粒子のうち単粒子の割合が50%以上とする。
			大量合成	
			バルク化技術	
			評価・解析	

1. 2 全体の成果

最終目標に対する成果

⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

窒化鉄系材料の合成とその基礎特性

間接合成法において、独自に構築した鉄化合物原料合成技術と熱処理の技術の融合により、グラムスケールで生成率約85%の高純度のα”-Fe₁₆N₂ ナノ粒子粉末の合成に成功した。これ

により、本研究開発で掲げた当初目標値（80%以上）を達成した。

R-Fe-N 磁石の高性能化に向けた要素技術開発

原料粉の微粉化は保磁力増加に効果がある。Sm-Fe-N 粉末を 0.53 μm まで微粉化することにより、保磁力が 0.91 MA/m（11.4 kOe）から 1.27 MA/m（16.0 kOe）まで増加した。また、Zn を 5 wt% 添加し 450 °C で熱処理した等方性ボンド磁石において、保磁力 1.6MA/m（20kOe）を超える保磁力が得られ、目標をクリアした。

⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術

グラムスケールにて所望組成の窒化鉄ナノ粒子をほぼ単相で得ることに成功し、X線回折の結果から、合成した窒化鉄ナノ粒子は従来の薄膜と比較してほぼ同じ格子定数を有することが分かった。また、大型炉の新規導入・一部改造を行い、最適条件下で約 10 g / B の合成を行った結果、窒化鉄ナノ粒子をほぼ単相で得ることに成功した。これにより、大量合成技術に関する目標値を達成した。

窒化鉄ナノ粒子の分散・表面修飾技術

2軸式ビーズミル分散装置および分散剤の最適化により、窒化鉄ナノ粒子（無機表面修飾）試料を一次粒子まで分散安定化した。また、無機・有機表面修飾の選択とともに分散条件および分離・精製条件の最適化により、窒化鉄磁性ナノ粒子が 50% 以上単分散した分散安定化スラリーを作製することに成功し、目標値を達成した。

2. 研究開発項目毎の成果

2. 1 成果の最終目標の達成度

開発名称	最終目標値	成果	達成度	コメント
⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究	窒化鉄系材料の開発に対して、 ・出来る限り早期に80%以上の $Fe_{16}N_2$ 相からなる微粒子を作製し、高性能磁石化に資する基本特性を確認する。 ・磁石化に向けて、より保磁力を高める磁性粉末の開発指針を得る。 R-Fe-N系材料の開発に対して、 ・モータ用磁石としての実用を考え、保磁力20kOe程度を目標とする。	窒化鉄系材料について、独自に構築した鉄化合物原料合成技術と熱処理の技術により、生成率約85%の $\alpha''-Fe_{16}N_2$ ナノ粒子のグラムスケール合成に成功した Sm-Fe-N系材料について、Zn添加(5wt%)により保磁力20kOeを超える等方性Sm-Fe-Nボンド磁石を得た	◎ ◎	分散、表面修飾、バルク化に展開するための基礎技術を獲得できた 今後、高保磁力と高い最大エネルギー積の両立が課題
⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発/窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築	・窒化鉄ナノ粒子を約10g/バッチで合成可能な技術を構築する。 ・窒化鉄ナノ粒子の分散・表面処理により全粒子のうち単粒子の割合が50%以上とする。	大型炉の新規導入・一部改造を行い、最適条件下で約10g/Bの合成を行った結果、窒化鉄ナノ粒子をほぼ単相で得ることに成功した 無機・有機表面修飾の選択とともに分散条件および分離・精製条件の最適化により、窒化鉄磁性ナノ粒子が50%以上単分散した分散安定化スラリーを作製することに成功した	◎ ○	数十g/B級の可能性を探索する必要あり 今後、単粒子割合の更なる増加、および、分散性の精密評価技術の構築が必須

達成度：◎目標以上の達成、○達成、△一部達成、×未達成

2. 1. 1 研究開発項目

⑨-1「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究」および⑨-3-1「Nd-Fe-B系

磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発」について、以下の2つの研究開発項目についての研究開発を実施した。

・研究開発項目⑨-1「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究」として、以下の①～④の4つの研究項目を設定し、本研究開発成果の最終ユーザとなる自動車会社との連携を図りつつ、産官学連携のもと効率的かつ強力に推進を行った。

①「窒化鉄系材料の合成とその基礎特性」として、所望相である Fe_{16}N_2 相が実現可能な直接合成あるいは間接合成技術の獲得を目指す。

②「R-Fe-N 磁石の高性能化に向けた要素技術開発」として、R-Fe-N 系化合物の優れた磁気特性に着目し、これらを高充填でバルク化して高性能磁石とするための要素技術を開発する。

③「新規磁石材料の高特性化に向けた指導原理獲得」として、材料計算科学的手法を用いて新規磁石材料の高飽和磁化・高結晶磁気異方性化に資する指導原理獲得を目指す。

④「モータ評価・解析」として、新規磁石および希土類磁石を用いたモータの特性比較し、新規磁石に適したモータ構造に関する検討し、磁石モータの試作と実証試験を行う。

・研究開発項目⑨-3-1「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築」として、以下の①～④の4つの研究項目を設定し、本研究開発成果の最終ユーザとの連携を図りつつ、産学官連携のもと効率的かつ強力に推進を行った。

①「分散・表面修飾の基礎技術」として、窒化鉄ナノ粒子の分散技術、ならびに、窒化鉄ナノ粒子表面を非磁性材料で覆う表面ナノ修飾技術の構築を行う。

②「大量合成技術」として、大型炉に付属する排ガス燃焼装置の一部改造を行い、炉内温度分布等の合成装置の基本的な特性の把握を行う。

③「バルク化技術」として、簡易プレス成型を基盤技術とした小型のバルク成型技術の構築に着手する。

④「評価・解析」として、材料計算科学的手法を用いて、磁石化にあたり窒化鉄系材料のポテンシャルを最大限活用できる指導原理の獲得を図る。

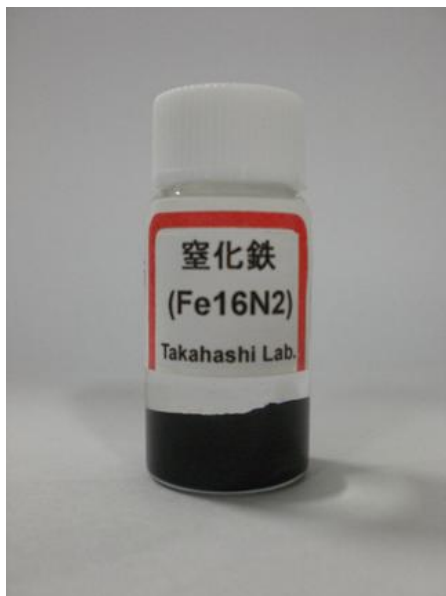
2. 1. 2 研究開発の成果

研究開発項目⑨-1「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究」

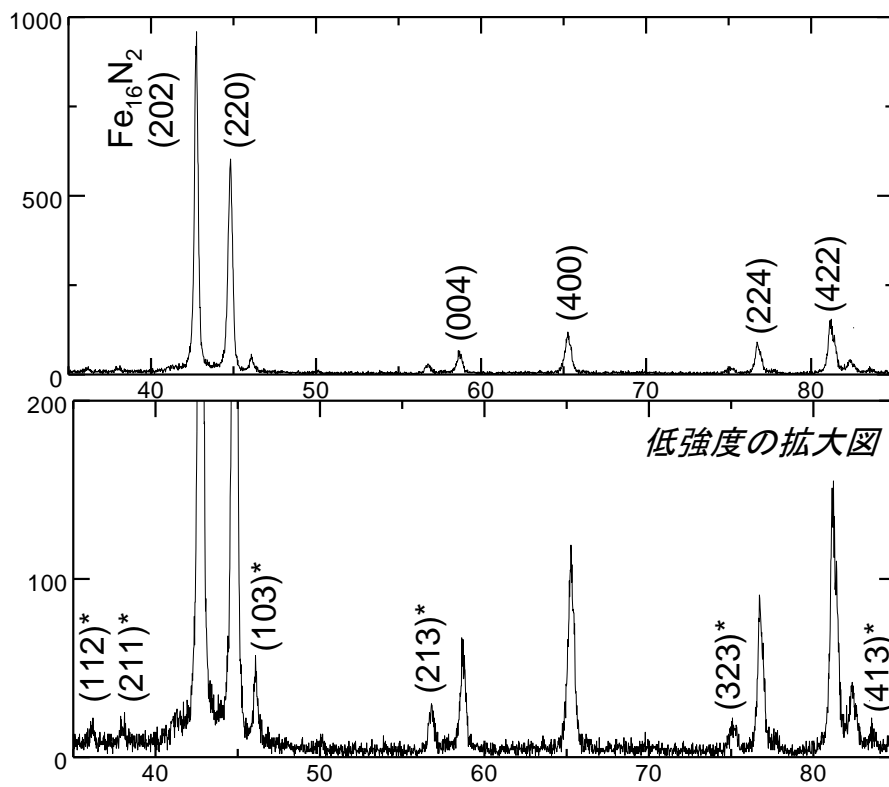
① 窒化鉄系材料の合成とその基礎特性

- ・いくつかの直接合成法では、窒化したナノ粒子を生成することに成功し、部分的ではあるものの所望相である $\alpha''\text{-Fe}_{16}\text{N}_2$ 相を得ることに成功している。
- ・間接合成法では、独自に構築した鉄化合物原料合成技術と熱処理の技術の融合により、グラムスケールで生成率 80%を超える高純度の $\alpha''\text{-Fe}_{16}\text{N}_2$ ナノ粒子粉末の合成に成

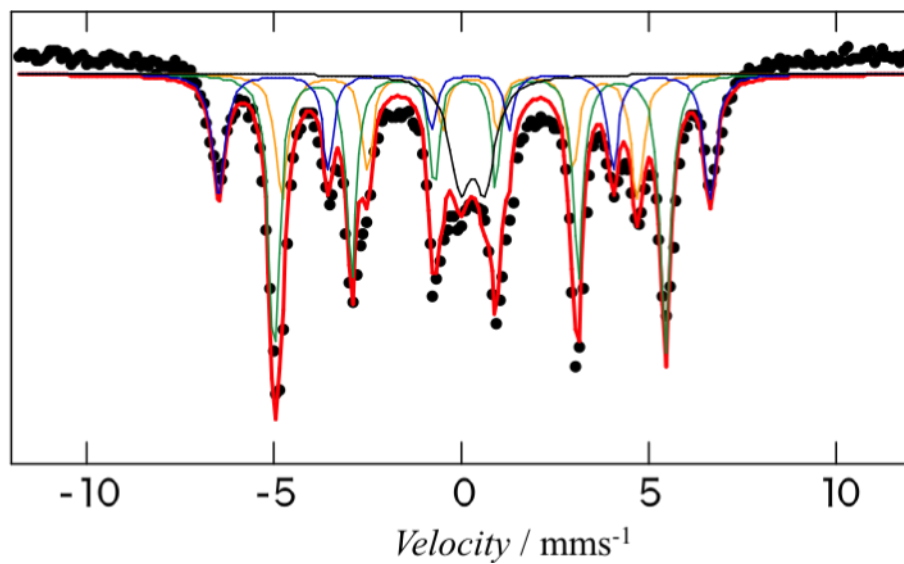
功した（図①-1、図①-2、図①-3、および、表①-1 参照）。これにより、本研究開発で掲げた当初目標値（80%以上）を達成した。



図①-1 α'' -Fe₁₆N₂粉末のサンプル写真.



図①-2 合成した窒化鉄ナノ粒子のX線回折結果.



図①-3 強磁性窒化鉄試料のメスバウアースペクトルと計算機フィッティング.

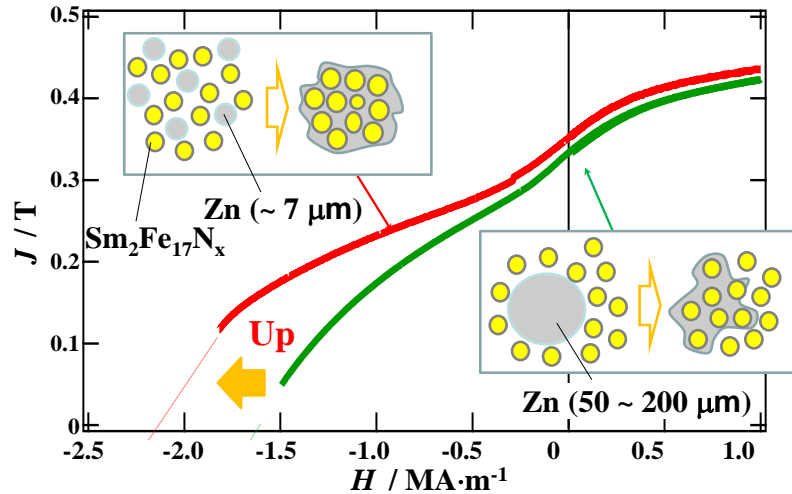
表①-1 メスバウアースペクトルの計算機フィッティング結果.

NO.	IS(mms ⁻¹)	HF(kOe)	qs(mms ⁻¹)	WIDTH(mms ⁻¹)	AREA(%)	帰属
1	0.161	406.3	-0.156	ave.035	21.6	Fe ₁₆ N ₂ (I)
2	0.163	323.1	0.135	ave.032	42.0	Fe ₁₆ N ₂ (II)
3	0.092	293.4	-0.270	ave.035	21.6	Fe ₁₆ N ₂ (III)
4	0	--	0		0	α-Fe
5	0.286	0.00	0.664	0.6800	14.8	常磁性Fe ³⁺

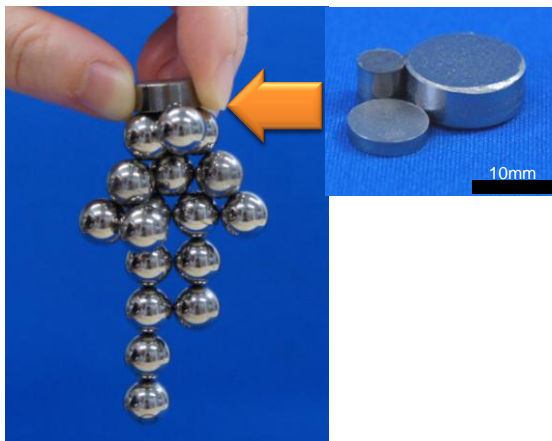
② R-Fe-N 磁石の高性能化に向けた要素技術開発」

- 原料粉の微粉化は保磁力増加に効果がある。Sm-Fe-N 粉末を 0.53 μm まで微粉化することにより、保磁力が 0.91 MA/m (11.4 kOe) から 1.27 MA/m (16.0 kOe) まで増加した。
- Zn を 5 wt% 添加し 450 °C で熱処理した等方性ボンド磁石において、保磁力 1.6MA/m (20kOe) を超える保磁力が得られ、目標をクリアした (図②-1 参照)。
- SmFeN 粉末と金属ガラス粉末を主とする金属バインダーとの混合粉末を、系統的に SPS 法で圧縮成形を行った結果、金属ガラスはバインダーとして有効に作用することが分かり、金属ガラスの過冷却液体状態の制御が鍵であることが示唆された。
- 力場や電磁場などを組み合わせた複合場焼結技術を高度化し、難焼結粉末である Sm-Fe-N 磁石粉末への適用を行った。充填性や焼結性を検討し、粉末の磁石特性を生かした緻密な焼結体を作製できる技術を開発し、高性能な焼結磁石を作製するための焼結技術を達成した。その結果、焼結密度 90% 以上、最大エネルギー積(BH)_{max} で 16.1MGOe を有する等方性磁石を作製することができた (図②-2 参照)。
- 異方性粉末では、焼結による保磁力の低下が著しく、また焼結密度も 80% 程度となった。この保磁力は Zn 処理することによって改良でき、熱処理条件の適正化によって焼結体の保磁力を元の粉末より高い 18kOe まで向上させることができた。
- 冷間圧縮せん断法により作製した等方性の Sm-Fe-N 磁石の最大エネルギー積は 8MGOe 程度であったが、異方性の Sm-Fe-N 磁石は最大エネルギー積で 20MGOe 以上の高性能な Sm-Fe-N 磁石であることがわかった。
- 超高压雰囲気下で R-Fe 系化合物 (R= La, Nd, Sm, Dy) および Fe-X 系(X= B, C, N, P, Sn, Sb) の合成を行ない、新規化合物の探索を行った。その結果、Nd-Fe 系における高压相単相、および、Fe-Sn 系において新規化合物の合成に成功した。

5wt%Znボンド磁石



図②-1 Zn 添加 Sm-Fe-N 等方性ボンド磁石の磁化曲線.



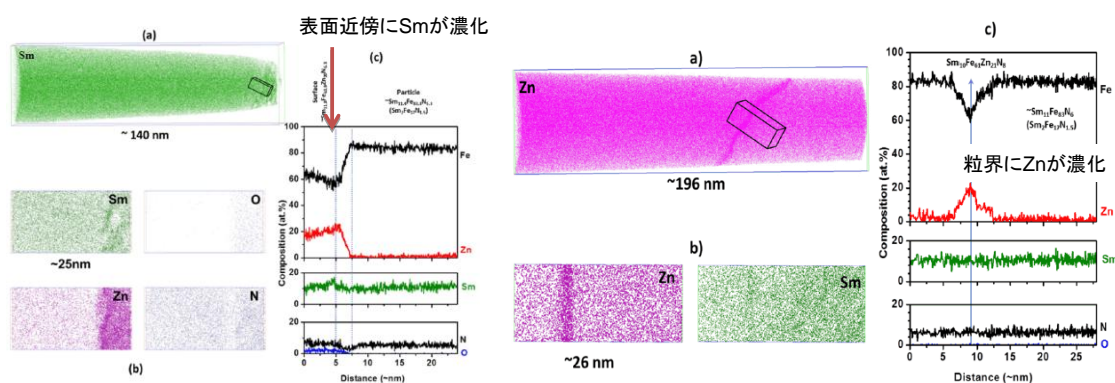
図②-2 Sm-Fe-N 等方性焼結磁石の外観.

③ 新規磁石材料の高特性化に向けた指導原理獲得」

- ・第一原理計算による材料設計から、ある金属元素 M あるいは M' で一部の Fe サイトを置換した $\text{Fe}_{12}M_4\text{N}_2$ 材料では、Fe-III (4d) サイトを M'^2 で置換することにより α -Fe に匹敵する飽和磁気モーメントを維持しつつ、磁気異方性エネルギーが正の値を示し、永久磁石材料としてのポテンシャルを有していることが分かった。
- ・ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 粉をメカニカルミリングと窒化により試作し、それを磁場中配向させスパークプラズマ焼結 (SPS) 法を用いて低温焼結を行い、Zn との混合量、SPS 法のプロ

セス条件最適化によって、バルク材で約 24kOe という高保磁力を達成した。高保磁力を示した試料の SEM-EDS、アトムプローブ組織解析の結果、結晶粒表面近傍に、Sm、Zn の濃化と Zn リッチ粒界相の形成が観察され、保磁力向上との関連が示唆された (図③-1 参照)。

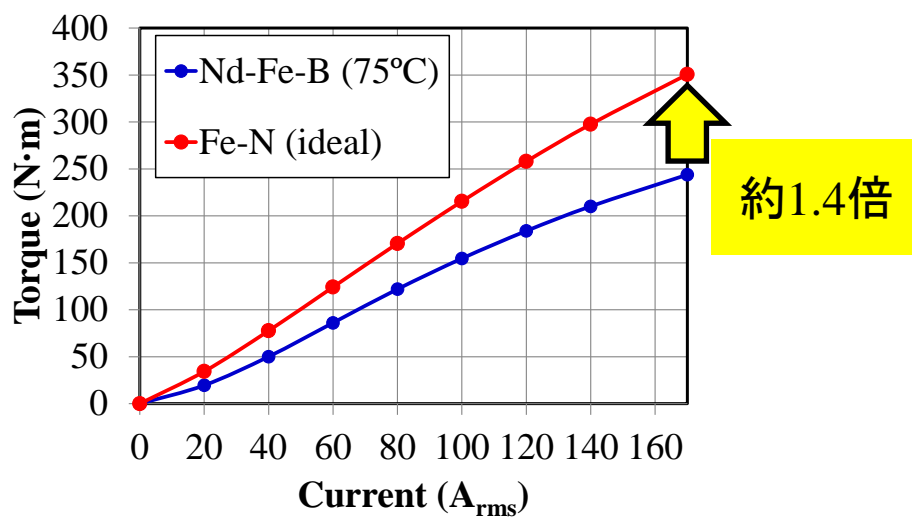
・合成した α'' -Fe₁₆N₂ ナノ粒子粉末に対し、透過型電子顕微鏡観察および EDS、電子線回折を用いて詳細に分析した結果、 α'' -Fe₁₆N₂ ナノ粒子は単結晶 α'' -Fe₁₆N₂ コアの周囲に酸化鉄 (Fe₃O₄) シェルの複合構造となっていることが分かった。



図③-1 最適熱処理試料表面部(左側)および粒界近傍(右側)のアトムプローブ解析結果

④ 「モータ評価・解析」

- ・市場より入手した主駆動モータを基準として、これを Fe-N 系磁石に置き換えた場合の特性を FEM により算定した。その結果、高配向かつ高充填の理想的な Fe-N 系磁石を適用することで、無負荷誘起電圧波形における電圧振幅は従来の Nd-Fe-B 系磁石材料を適用した場合に比べ、1.6~1.7 倍増大し、トルクは 40%程度向上することが分かった (図④-1 参照)。
- ・モータ構造において、表面磁石型構造および埋込磁石型構造における磁石の不可逆減磁を検討した結果、両構造において磁石の不可逆減磁を抑制する最適な構造があることを見出した。特に、Fe-N 系磁石の場合は、分布巻で埋込磁石構造とした方が、トルクおよび減磁耐力の面で有利であることが明らかになった。



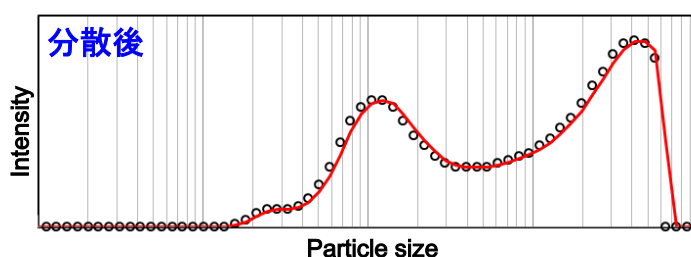
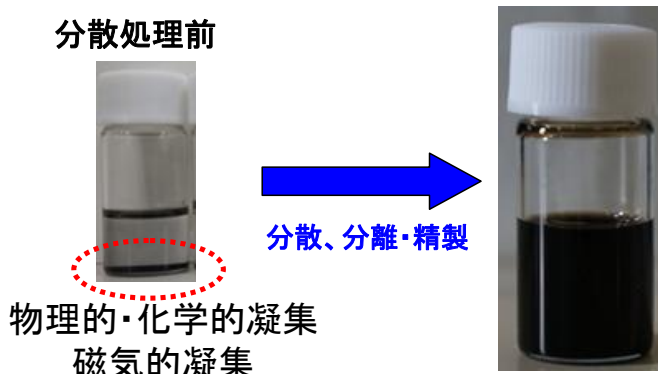
図④-1 従来の永久磁石と新規磁石を用いたトルク特性.

研究開発項目⑨-3-1「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築」

①「分散・表面修飾の基礎技術」

・ビーズミル分散装置および分散剤の最適化により、窒化鉄ナノ粒子（無機表面修飾）試料を一次粒子の粒径を維持したまま30分程度安定した分散体を得た。

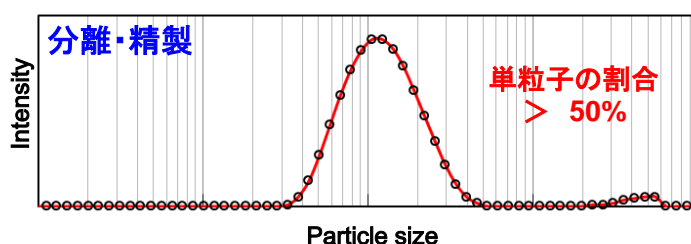
・窒化鉄磁性ナノ粒子が50%以上単分散した分散安定化スラリーを実現するための無機・有機表面修飾材料の選択、および、処理方法・条件の最適化によって、目標値である50%以上の単分散化を達成した（図①-1参照）。



②「大量合成技術」

・窒化鉄の原料について、種々合成条件を検討して1kg/Bの合成に成功した。

・一部改造を行った大型炉を用いて10g/Bで窒化鉄ナノ粒子の合成を試みた。X線回折の結果から、1g/Bで合成した窒化鉄ナノ粒子と同等の回折線が10g/Bで合成した窒化鉄ナノ粒子においても得られている。このことから、10g/Bでほぼ単相の窒化鉄ナノ粒子を合成することに成功し（図②-1参照）、目標を達成した。



図①-1 分散後、および、分離・精製後のナノ粒子（表面修飾あり）の粒度分布。

③「バルク化技術」

・外部磁場による配向を試み、一部の窒化鉄ナノ粒子がc軸配向していることが分かった。

・分散処理や表面状態の改良は最適化されていない窒化鉄ナノ粒子を用い成型体化を検討した。その結果、窒化鉄ナノ粒子を用いてバルクに匹敵する試料サイズで成形体・焼結体の試作に成功した（図③-1参照）。

・磁性ナノ粒子をコアとしその周囲を非磁性層で覆ったコア-シェル型ナノ粒子を用いて低温焼結の可能性を検討した。その結果、コア粒子の形状を維持したまま、シェルの焼結により緻密化することが分かった。

・独自に顆粒化した酸化鉄ナノ粒子を用いて成型することで、体積充填率 67vol%の緻密化した成型体を試作することに成功した。



図②-1 大量合成した窒化鉄ナノ粒子の外観写真。



図③-1 得られた窒化鉄ナノ粒子のディスク状成型体

④「評価・解析」

- ・高保磁力磁性探針を用いることで微視的磁化状態の解析が可能であることを示した
- ・窒化鉄粒子表面は数ナノメートルの酸化層で覆われていることを明らかにした
- ・LLG シミュレーションの結果から、単一の結晶粒径が単磁区結晶粒径よりも小さい場合でも内部の不均一な磁場分布を考慮する必要がある

2.2 知的財産権等の取得及び標準化の取り組み

現在までの成果発表に関してまとめると、以下の表Ⅲ-2-1 のようになる。

表Ⅲ-2-1 本研究における成果発表のまとめ

	研究開発項目	H22	H23	H24
特許出願	⑨-1	3	0	0
	⑨-3-1	0	1	1
	合計	3	1	1
論文	⑨-1	4	0	0
	⑨-3-1	0	5	1
	合計	4	5	1
研究発表・講演	⑨-1	11	0	0
	⑨-3-1	0	12	3
	合計	11	12	3
受賞実績	⑨-1	2	0	0
	⑨-3-1	0	1	0
	合計	2	1	0
新聞・雑誌等への掲載	⑨-1	13	0	0
	⑨-3-1	0	0	1
	合計	13	0	1
展示会への出展	⑨-1	1	0	0
	⑨-3-1	0	2	0
	合計	1	2	0

IV. 実用化の見通しについて

1. 実用化の見通し

1.1 成果の実用化可能性

本プロジェクト実施の基礎技術開発成果に基づき実用化への研究開発をさらに進めていく。
⑨-1 よりスタートして、さらに研究開発テーマの絞り込みを行った⑨-3-1 終了に到った現時点での成果概要は、

- ・ 窒化鉄ナノ粒子原料を kg/B スケールにて合成
- ・ 窒化鉄ナノ粒子を 10g/B で合成
- ・ 窒化鉄ナノ粒子が 50vol%以上単分散した分散安定スラリーを得た

である。今後の実用化へ向けた研究課題としては、

- ・ 窒化鉄ナノ粒子原料の数十 kg/B～ton/B レベルでの量試・生産技術確立
- ・ 窒化鉄ナノ粒子の kg/B 以上の合成技術構築
- ・ バルク化への加工プロセス技術開発（窒化鉄ナノ粒子の分散・表面修飾技術のさらなる向上）
- ・ バルク化のための装置探索・改良等
- ・ バルク化技術の構築

これらの研究開発項目をクリアして、最終的には「コストを念頭においた量産プロセスの確立」が必須となる。

現時点でアプリケーションに搭載され実用化されるまでには 7～10 年間の歳月が必要であるが、早い段階で川下メーカーとの垂直連携を進め、各研究開発段階で作製可能なものより実用化への模索検討を行っていく予定である。アプリケーションとしては、風力発電モータ用磁石、自動車制御・駆動用磁石等を最終目標としており、それに到るまでは、低～中レベルの Nd 系磁石やフェライト磁石代替を検討する。

また、国際情勢や元素戦略という側面より、今後も継続してレアメタル・レアアースを使用しない材料へのニーズは絶えることがない。本プロジェクトにて研究開発テーマとして取り上げた鉄-窒素系化合物が大きな貢献ができるよう国との意思疎通、コンセンサス、連携を強化していく。

1. 2 波及効果

本プロジェクトで実施した基礎技術開発は、波及効果として以下の分野での実用化が期待される。

まず、獲得された技術を整理する。

- ① 化学的・物理的に凝集したナノ粒子の単分散化・最低限の表面修飾技術
- ② ナノ粒子の成型体化技術

については、塗布型各種電子デバイス部材・部品（例えば、コンデンサ、OLED、蛍光体材料、アンテナ、透明導電膜等）への適応が可能である。ナノ粒子の多くは分散剤を過剰に溶存させた有機溶媒中にて生成させる。つまりナノ粒子表面には実用的には必要のない過剰の分散剤や表面修飾剤種が付着・吸着・結合している。これは加工後のナノ粒子自身の体積分率を激減させ、必要な機能や特性を出現させることを阻害する。別に、この表面修飾剤種を取り除くため、あるいは、ナノ粒子の機能付与（例えば、高温相結晶構造の出現等）のために、気相中で熱処理を行うことがある。これにより、化学的・物理的にナノ粒子が凝集してしまう。この凝集により、折角の「ナノ」という利点を生かし切れなくなる。これらに、ナノ粒子の単分散化・最低限の表面修飾技術を用いることは、一つの技術の突破口となり得る。一方②について、これまで多くの場合、ナノ粒子（インク）を塗布にて薄膜～厚膜を作製してそれを他部材等と組み合わせることによって姿形を作り出してきた。あるいは主体となる樹脂等を含む別素材へ

の添加等によって成型されることはあった。本プロジェクトのナノ粒子の成型体化技術は、将来的には6～9割程度の体積分率をナノ粒子にて作り上げるものであり、世界初の技術開発への挑戦といっても過言ではない。これにより、各種磁石材料に限らず、ナノサイズ特有の物性を積極的に活かしたバルク材料への適応が可能である。

⑨-3-2 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

Ⅲ. 研究開発の成果について

1. 事業全体の成果

1. 1 研究開発内容

エコカー等の主幹機器に使用されるNd-Fe-B系焼結磁石に代わる永久磁石の開発を目指し、国立大学法人大阪大学、国立大学法人長崎大学、大学法人千葉工業大学らがこれまでに独自に開発してきた「非平衡状態相」、すなわち、粒界改質、人工格子／急冷合金等の形成技術等をもとに、特定国に依存した希土類原材料を主要成分としないハード磁性材料を念頭に、その系統的な探索を通して新規な永久磁石を開発研究する。すなわち、独自の経験則に基づく磁石材料探索マップを作成し、およびその中で有望と思われる、ソフト／ハード複合材料系およびハード／ハード複合材料系を基本構成とする人工格子磁石あるいは急冷凝固法を用いた新規組成からなる磁石材料を開発・探索し、得られた候補材料の組織制御プロセスや成形技術の研究開発を行い、Nd代替磁石としての可能性を明らかにする。

具体的な研究開発項目は以下の通りである。

研究開発項目「① Nd系磁石を代替する新規磁石材料の探索」

Pulsed Laser Deposition (PLD) 法を用いた高速成膜により、Nd系磁石を代替することが可能な新規磁石の創製を目指す。ここでは、膜厚10 μ m以上の等方性厚膜磁石を対象とし、まず代替磁石の超多周期人工積層構造を計算機シミュレーションで設計する。特に高温下での磁気特性に着目し、高温使用下での積層構造磁石のナノ構造と磁気特性の関係を明らかに、積層構造磁石膜の優位性を明らかにする。次に、シミュレーションの結果をもとに人工積層構造膜磁石を創成する。人工積層構造膜磁石は、積層周期を数nm以下まで減ずることにより、高温特性に優れた磁石になると期待され、等方性Nd-Fe-B厚膜磁石の(BH)maxを超える人工積層構造膜磁石の創成を目指す。

急冷凝固法による新規磁石材料の研究開発では、高い磁化と保磁力を有する新しいFe系合金およびCo系合金の開発を目指す。急冷凝固法では通常の溶解凝固法では得られない非平衡状態相である準安定相や新しい金属間化合物相などが得られることが期待される。FeやCoなどの磁性材料にTiやZrなどの高融点金属を添加したFe系合金およびCo系合金およびBやCなどの半金属軽元素を添加したFe系合金およびCo系合金を作製し、どのような非平衡状態相が得られるかについて検討する。また、得られた非平衡状態相を含む試料の構造と磁気特性の関係について調べ、Nd-Fe-B系磁石に代わる新規永久磁石としての可能性について検討する。さらに、得られた各種磁石材料に対し、主に透過電子顕微鏡(TEM)を用いてナノレベルまでの詳細な構造ならびに組成解析を行い、保磁力等の磁気特性を効

率よく発現させる組織制御への指針を得る。

研究開発項目「② Nd系磁石を代替する複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発」

研究開発項目①で得られた各種新規磁石材料ならびにソフト/ハード複合材料系およびハード/ハード複合材料系を基本構成とする複合磁石の永久磁石化プロセスの開発を行う。実用化に向けて必要な磁石粉末の焼結固成型技術の開発や組織制御プロセスの最適化、さらにはBi-Zn系またはBi-Mn系の新規メタル複合バインダーを新たに開発し、永久磁石相の磁石性能のみならず強磁性体であるMnBi（保磁力は温度と共に上昇）の形成を利用した高保磁力磁石の開発を目指す。

開発名称	2010	2011	2012	最終目標値
⑨-3-2Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発		新規磁性材料の探索 →	複合組織磁石化技術 →	・独自の経験則に基づく磁石材料探索マップに従い、磁石を試作し代替磁石の可能性を見極める。

1.2 全体の成果

研究開発項目「① Nd系磁石を代替する新規磁石材料の探索」

Nd-Fe-B代替磁石の創製を念頭に、積層型SmCo₅/α-Fe人工積層磁石のナノ組織と室温で得られる磁気特性の関係をマイクロマグネティクス理論に基づく計算機シミュレーションで検討した。計算の結果、積層周期を20nmまで減ずることにより、Nd-Fe-B磁石の最大エネルギー積(BH)_{max}の限界値(512 kJ/m³)を越える(BH)_{max}を達成できることが明らかになった。実用温度を念頭に置いた200°Cでの磁気特性においてもSmCo₅/α-Fe積層磁石の(BH)_{max}値がNd₂Fe₁₄B/α-Fe積層磁石で到達可能な(BH)_{max}値を大きく上回り、SmCo₅/α-Fe人工積層構造磁石は比較的高温で使用されるNd-Fe-B系磁石を代替できる可能性を持った磁石であることが明らかとなった。実際にPLD(Pulsed Laser Deposition)法を用いて積層周期10-20nmのSmCo₅/α-Feを500周期程度積層した人工積層構造SmCo₅/α-Fe磁石を作製した。その結果、150

～200°Cにおいて、等方性 Nd-Fe-B 磁石に勝る特性を得ることに成功した。

急冷凝固法による新規磁石材料の研究開発では、Fe 系合金、Co 系合金、Mn 系合金の探索を行った。その結果、本研究開発項目における目標である「新規磁石材料としては $Br > 0.5$ T を有するもの」を満たす新規磁石材料としては Sm-Zr-Fe 系磁石、Fe-Ni 系磁石、Co-Fe-Zr-B 系磁石を、また「新規磁石材料としては $H_{cj} > 0.5$ MA/m 以上を有するもの」を満たす新規磁石材料としては Sm-Fe 系磁石、Co-Zr-Mo-B 系磁石、Mn-Ga 系磁石、MnBi 系磁石をそれぞれ見出すことに成功した。特に飽和磁化の高い Fe-Ni 磁石と保磁力の大きい Sm-Fe 系磁石は今後の研究により Nd-Fe-B 磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できることが、また MnBi 系磁石は高温特性が優れているため高温用に限定すれば Nd-Fe-B 磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できることがわかった。

PLD (Pulsed Laser Deposition) 法あるいは急冷凝固法で試作された 5 種類の新規磁石材料について、主に透過電子顕微鏡 (TEM) を用いた詳細な構造解析および組成分析を行った。急冷凝固 FeNi 合金磁石では、コラム状 FeNi 結晶の集合組織が形成されており、各コラム内はいずれも fcc 格子点を Fe 原子と Ni 原子がランダムに占めたほぼ完全な不規則状態であった。その他急冷凝固 Co-Zr 系合金磁石では $Co_{23}Zr_6$ 相と Co 相がわずかに混在した Co_5Zr 準安定相から構成され、 Co_5Zr 相は Be_5Au 型結晶構造を基本とした特異な積層構造を有することがわかった。この薄帯は粒径 200nm 程の微細な Co_5Zr 結晶粒が数個ずつ集まった $1\mu m$ 程度の集合粒組織を有しており、2at%B 添加により $0.5\mu m$ 程度まで微細化され、これに伴って保磁力が大きく向上することがわかった。急冷凝固 Mn-Bi 系合金磁石では網目状に連なった MnBi 微細粒が急冷薄帯の射出方向に $\langle 111 \rangle$ 配向しており、網目の間をやや傾いた MnBi 微結晶が埋め尽くしていることが判明した。このような結晶方位の揃ったサブミクロンオーダーの微細結晶粒組織となっているため、高い保磁力を発現しているものと推察できる。

研究開発項目「② Nd 系磁石を代替する複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発」

新規磁石創製を目指した組織制御プロセスおよび磁石化成型技術の開発を行った。SmCo₅ の粉碎については、界面活性剤として AOT (ジ(2-エチルヘキシル)スルホコハク酸ナトリウム) を用いたヘキササン中での湿式ボールミルが有効であることが分かった。Fe との複合化では相互作用が不十分であるものの、8 wt%Fe 程度までは保磁力が比較的維持できており、残留磁化も 11% 程度の向上が見られた。分子軌道法を用いた計算では、Sm₂Fe₁₇CN₂ および Fe₁₆C₂ が構造安定性が高く、高温仕様磁性材料に適している可能性が示唆された。また、難焼結性の Sm₂Fe₁₇N₃ や SmCo₅ ハード磁性相では、Fe や Co のソフト相複合化により、焼結時の緻密化を促進させることに成功した。これはソフト相が結合材の役割を果たしていることによると考えられ、複合磁石の焼結法として有効であることが期待される。

希土類を用いない磁性材料として、MnBi 系磁性材料について検討を行った。作製直後の MnBi 粉末の保磁力は 247 kA/m であったが、10 h のボールミル粉碎により 724 kA/m まで向上した。Fe の添加効果については、3.8wt%の Fe および成形助剤の Sn とともにボールミル混合

粉碎したものについて、飽和磁化 $M_s = 540 \text{ mT}$ 、残留磁化 $M_r = 456 \text{ mT}$ 、保磁力 $H_{cJ} = 549 \text{ kA/m}$ が得られた。また温度特性については、 140°C 以上において S34GH(市販の高保磁力型 Nd-Fe-B 焼結磁石、カタログ値) の保磁力を大きく上回ることが確認された。

開発名称	最終目標値	成果	達成度
⑨-3-2Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用した Nd 系磁石代替実用永久磁石の研究開発	・独自の経験則に基づく磁石材料探索マップに従い、磁石を試作し代替磁石の可能性を見極める。	PLD 法による人工積層構造膜磁石の開発および急冷凝固法による新規磁石の探索において、当初の目標値を満足する代替磁石の開発に成功した。また複合磁石の新規成型プロセスを提案した。	○

達成度：◎目標以上の達成、○達成、△一部達成、×未達成

2. 研究開発項目毎の成果

2. 1 成果の最終目標の達成度

2. 1. 1 研究開発項目

・研究開発項目⑨-3-2「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用した Nd 系磁石代替実用永久磁石の研究開発」として、以下の①～②の2つの研究項目を設定し、代替磁石の可能性を見極める。

- ①「新規磁石材料の探索」として、独自の経験則に基づく磁石材料探索マップの中で有望と思われる磁性材料の磁石性能、耐久性等を評価し代替磁石の可能性を見極める。
- ②「複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発」として、既存のハード磁性材料新規組成および構造をもつ磁石材料を中心に探索を行う。

2. 1. 2 研究開発の成果

① 「新規磁石材料の探索」

「①-1 成膜法による新規人工格子磁石材料の研究開発」

(1) 代替磁石の設計

Nd-Fe-B 代替磁石の創製を念頭に、積層型 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 人工積層磁石のナノ組織と室温で得られる磁気特性の関係をマイクロマグネティクス理論に基づく計算機シミュレーションで検討した。図1に示すモデル磁石への計算の結果、積層周期を 20 nm 程度まで減ずることができれば、Nd-Fe-B 磁石の最大エネルギー積 $(BH)_{\max}$ の限界値 (512 kJ/m^3) を越える $(BH)_{\max}$ を達成できることが明らかになった。さらに、積層周期を 10 nm 程度まで減じた場合には、得られる $(BH)_{\max}$ 値は 800 kJ/m^3 に達した。この値は、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 積層磁石で達成される最高の $(BH)_{\max}$ 値と同等である。 SmCo_5 の高い磁気異方性が、磁石内に多量の $\alpha\text{-Fe}$ を含有することを可能にしており、 SmCo_5 が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ より低飽和磁化にもかかわらず、 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ コンジット磁石では Nd-Fe-B 系磁石と同等の特性を得ることが可能である。

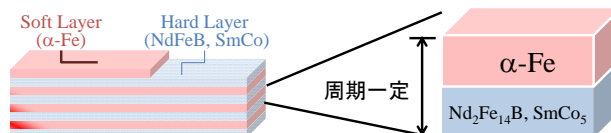


図1 人工積層型磁石の計算モデル

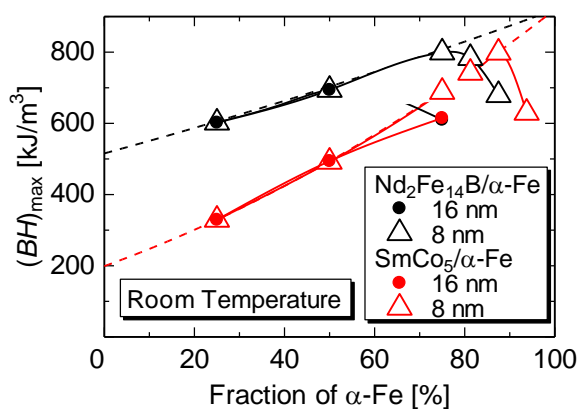


図2 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 及び $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 人工積層型磁石で得られる $(BH)_{\max}$ 値の $\alpha\text{-Fe}$ 量依存性。図中の記号は積層周期を表す。

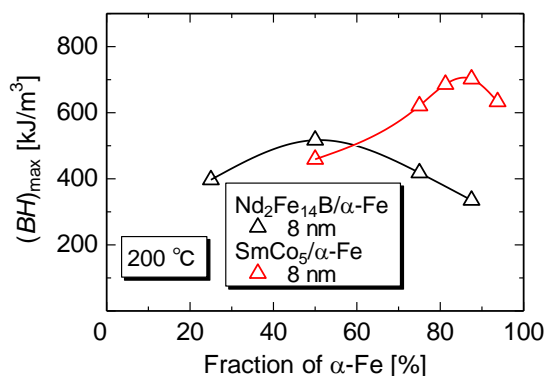


図3 200°Cにおける $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 及び $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 人工積層型磁石で得られる $(BH)_{\max}$ 値の $\alpha\text{-Fe}$ 量依存性。積層周期は 8 nm に固定。

表 1 保磁力の温度係数の計算値

保磁力の温度係数	
SmCo ₅ /α-Fe	
50%	-0.266 ± 0.02 [%/°C]
75%	-0.209 ± 0.01 [%/°C]
81.25%	-0.213 ± 0.07 [%/°C]
87.5%	-0.201 ± 0.08 [%/°C]
Nd ₂ Fe ₁₄ B 約-0.5 [%/°C]	

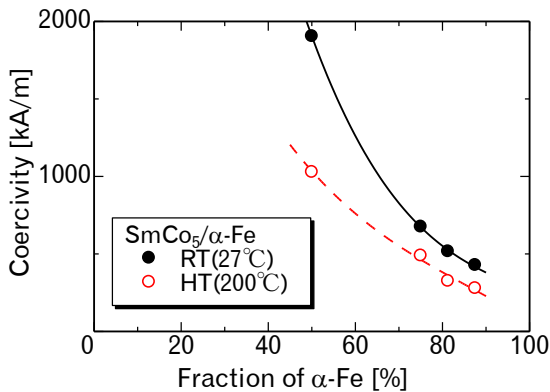


図 4 保磁力のα-Fe 量依存性

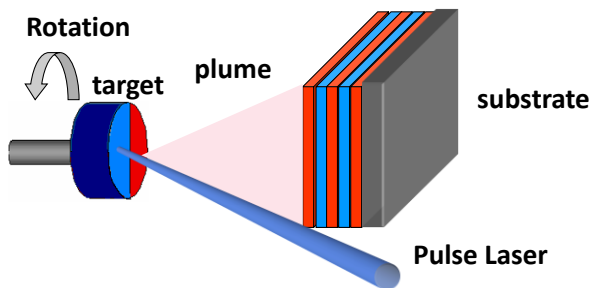


図 5 PLD 法による積層磁石作製法

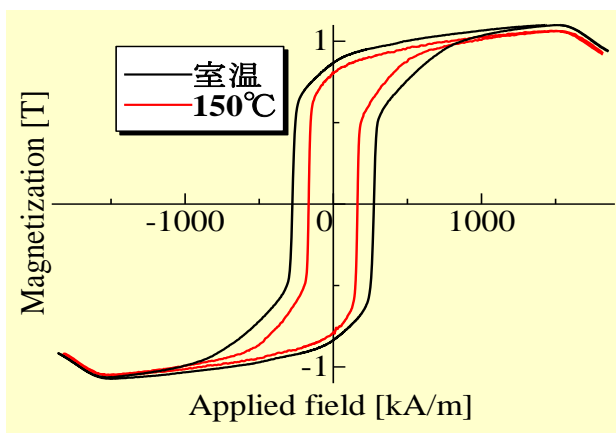


図 6 人工積層構造 SmCo₅/α-Fe 磁石の磁気特性

図 3 には 200°C で計算した $(BH)_{max}$ 値を示している。200°C では、SmCo₅/α-Fe 積層磁石の $(BH)_{max}$ 値が Nd₂Fe₁₄B/α-Fe 積層磁石で到達可能な $(BH)_{max}$ 値を大きく上回り、その最高値は 700 kJ/m³ 程度となった。これは、SmCo₅ の磁気異方性の小さな温度係数が、積層型磁石の保磁力の温度依存性に反映されるためである。

表 1 には各 α-Fe 量における保磁力の温度係数の計算値を示している。-0.2 ~ -0.3 %/°C 程度の温度係数を達成可能であることが了解される。図 4 に示す保磁力の α-Fe 量依存性から了解されるように、50% SmCo₅/50% α-Fe 積層型磁石においては、200°C においても 1000 kA/m の保磁力を確保することができる。このときの $(BH)_{max}$ 値は 400 kJ/m³ 程度である。

以上より、SmCo₅/α-Fe 人工積層構造磁石は比較的高温で使用される Nd-Fe-B 系磁石を代替できる可能性を持った磁石と結論することができる。

(2) PLD 法による人工積層構造膜磁石の創製

図 5 に示す PLD (Pulsed Laser Deposition) 法を用いて SmCo₅/α-Fe を 500 周期程度積層した人工積層構造 SmCo₅/α-Fe 磁石を作製した。積層周期を 20 nm 以下まで減じ、得られた多周期積層膜を結晶化することにより、SmCo₅ 層と α-Fe 層が磁氣的に強固に結合したナノコンポジット磁石を得ることができた。得られた磁気特性を図 6 に示す。①-4 の研究によれば、SmCo₅ および α-Fe 層の平均厚は、それぞれ、およそ 11 および 7 nm である。結晶化後には、30-100 nm 程度の SmCo₅ 結晶が等方的に分布した構造へと積層構造の崩れる傾向が観測された。室温で得られた保磁力、残留磁気分極、 $(BH)_{max}$ 値は、それぞれ、280 A/m, 0.87 T, 88 kJ/m³ であった。また、7 T までの印加磁界から求めたヒステリシス曲線の角形比は 0.73 と高い値を示した。なお、得られた低保磁力の一因は異方性の磁石が達成されていないことにある。

図7には保磁力の温度依存性を示している。室温～200℃度の温度範囲で決定した保磁力の温度依存性は $-0.3\%/^{\circ}\text{C}$ と計算値に比べてやや大きな値であったが、Nd-Fe-B系磁石のそれに比べて十分小さい値であった。

保磁力の温度係数がNd-Fe-B系磁石の値に比べて小さいことから、 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石では、高温での磁気特性の劣化を抑制できる。図8には、等方性Nd-Fe-B/ $\alpha\text{-Fe}$ および $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石の室温および150℃での磁気特性を比較して示している。室温では、保磁力、残留磁化、 $(BH)_{\text{max}}$ 値とも、Nd-Fe-B/ $\alpha\text{-Fe}$ 磁石が優れているが、150℃においては、 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石の $(BH)_{\text{max}}$ 値がNd-Fe-B/ $\alpha\text{-Fe}$ のそれを上回ることが了解される。なお、等方性圧縮成形ボンド磁石における150℃における $(BH)_{\text{max}}$ 値は $40\text{kJ}/\text{m}^3$ 程度に満たないので、これに比べても、 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石の $(BH)_{\text{max}}$ 値は高い値である。

以上、積層周期10～20 nm程度の人工積層構造をPLD法により創製することができた。結晶化した磁石の磁気特性は、150～200℃において、等方性Nd-Fe-B磁石に勝る特性を示した。一方で、得られた保磁力は計算値に遙かに及ばないものであった。この一因は、磁石の異方化が実現されていないことにあり、今後、異方化が課題となる。

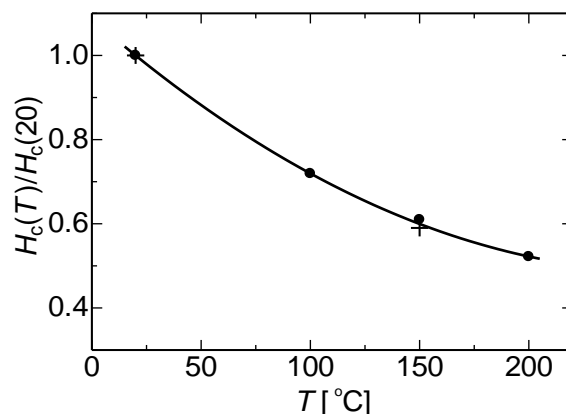


図7 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石の保磁力の温度依存性

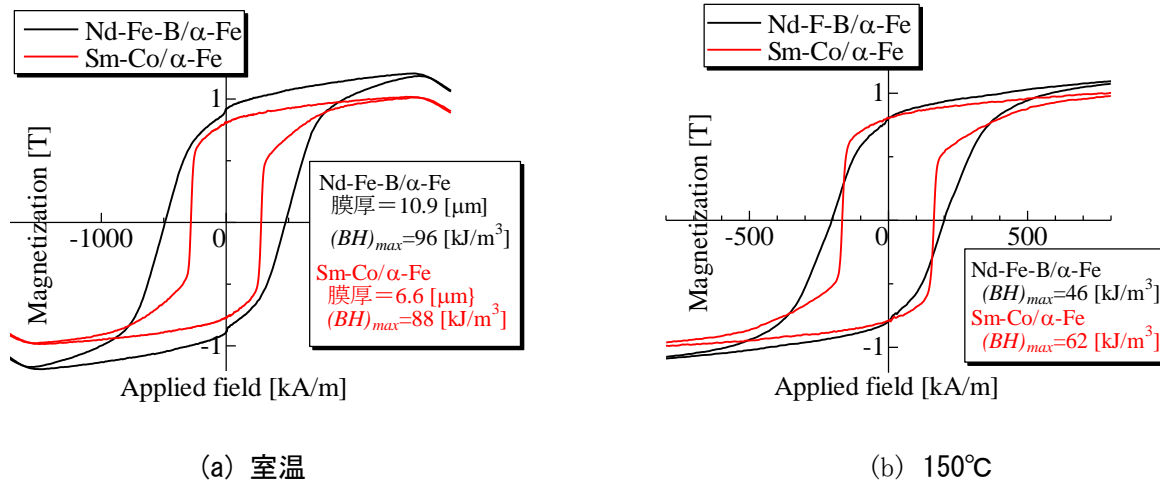


図8 等方性Nd-Fe-B/ $\alpha\text{-Fe}$ および $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石の室温および150℃での磁気特性を比較

「①-2 急凝固法による新規磁石材料の研究開発」

本開発項目では、新しい磁石材料の探索を急凝固法により行った。新しい磁石材料としては、Fe、Co、Mnなどの磁性材料をベースとするFe系合金、Co系合金、Mn系合金とした。まず、新しい磁石材料の候補であるFe系合金、Co系合金、Mn系合金をアーク溶解または高周波溶解により作製し、得られた合金の急凝固を行った。次に、急凝固法で作製した試料および急凝固法で作製した試料に熱処理を施した試料の構造と磁気特性の関係について調べ、新規磁石材料としての可能性について検討した。なお、本研究開発項目における目標としては「新規磁石材料としては $Br > 0.5 \text{ T}$ または $Hcj > 0.5 \text{ MA/m}$ 以上を有するもの」を目指すこととした。

まず、Fe系合金としてはSm-Fe合金とFe-Ni合金について検討した。Fe系合金としては希土類金属としてSmを含むSm-Fe合金において、急凝固法で作製したアモルファスのSm-Fe合金急冷薄帯に最適な熱処理を施すことにより $Hcj = 2.0 \text{ MA/m}$ を超える非常に大きな保磁力を有するSm-Fe系磁石が得られることがわかった。また、得られたSm-Fe系磁石の構造について調べたところ、非常に大きな保磁力を有するSm-Fe系磁石は準安定相である Sm_5Fe_{17} 相からなることがわかった。しかし、得られたSm-Fe系磁石の残留磁化 Br は 0.4 T 程度と小さいこともわかった。そこで、Sm-Fe合金に対する添加元素を検討したところ、Sm-Fe合金のSmの一部を置換したSm-Zr-Fe合金において、急凝固法で作製したアモルファスのSm-Zr-Fe合金急冷薄帯に最適な熱処理を施すことにより $Br > 0.5 \text{ T}$ および $Hcj > 0.5 \text{ MA/m}$ の両方を満足するSm-Zr-Fe系磁石が得られることがわかった。

それに対して、急凝固法で作製したFe-Ni合金急冷薄帯は高い飽和磁化を有するがその保磁力 Hcj は 0.02 MA/m 程度と非常に小さいことがわかった。また、得られたFe-Ni合金急冷薄帯に熱処理を施しても、Fe-Ni合金にBなどの半金属を微量に添加しても保磁力はわずかに向上するだけで目標である $Hcj > 0.5 \text{ MA/m}$ まで向上することは難しいことがわかった。このFe-Ni系磁石の保磁力の向上には製造条件および組成の最適化など更なる検討が必要であると思われる。しかし、Fe-Ni系磁石は高い飽和磁化を有するため新しい磁石材料として非常に有望であると思われる。

次に、Co系合金としてはCo-Zr合金について検討した。急凝固法で作製したCo-Zr合金急冷薄帯およびCo-Zr合金急冷薄帯に熱処理を施したCo-Zr磁石は 0.3 MA/m 程度の保磁力を有することがわかった。そこでCo-Zr合金に対する添加元素を検討したところ、Co-Zr合金に半金属のBを添加すると保磁力が向上することがわかった。また、Co-Zr合金に半金属のBと高融点金属のMoを同時に添加するとさらに保磁力が向上することがわかった。急凝固法で作製したCo-Zr-Mo-B合金急冷薄帯に最適な熱処理を施して作製したCo-Zr-Mo-B系磁石は保磁力の目標値である $Hcj > 0.5 \text{ MA/m}$ を示すことがわかった。また、Co-Zr-B合金にFeを添加するとその保磁力は幾分小さくなるが、残留磁化が向上することがわかった。急凝固法で作製したCo-Fe-Zr-B合金急冷薄帯に最適な熱処理を施して作製したCo-Fe-Zr-B系磁石は残留磁化の目標値である $Br > 0.5 \text{ T}$ を示すことがわかった。

しかし、Co-Zr合金急冷薄帯およびCo-Zr-B合金急冷薄帯で保磁力が得られる理由については

詳細にはわかっていない。この急凝固法で作製した Co-Zr 合金急冷薄帯および Co-Zr-B 合金急冷薄帯の保磁力の起源を調べるため様々な分析を行ったところ、保磁力を示す Co-Zr 合金急冷薄帯および Co-Zr-B 合金急冷薄帯は準安定相である Co_5Zr 相からなることがわかった。現在、その微細構造の詳細について調べている。

また、Mn 系合金としては Mn-Ga 系合金および Mn-Bi 系合金について検討した。急凝固法で作製した Mn-Ga 合金急冷薄帯はアモルファスではないがほとんど保磁力を示さないことがわかった。しかし、得られた Mn-Ga 合金急冷薄帯に最適な熱処理を施すことにより作製した Mn-Ga 系磁石は保磁力の目標値である $H_{c_j} > 0.5 \text{ MA/m}$ を示すことがわかった。(図 1 参照) 得られた Mn-Ga 系磁石の構造について調べたところ、大きな保磁力を有する Mn-Ga 系磁石は準安定相である DO_{22} 構造 (tetragonal) をとる Mn_3Ga 相からなることがわかった。

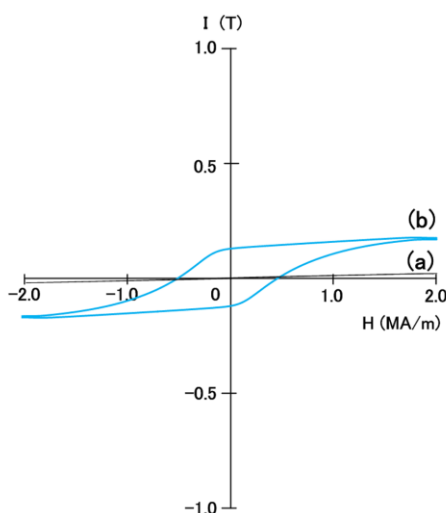


図 1 (a) 急凝固法で作製した Mn-Ga 合金急冷薄帯および (b) Mn-Ga 合金急冷薄帯に 700°C で熱処理を施して作製した Mn-Ga 磁石のヒステリシス曲線

最後に、急凝固法で作製した Mn-Bi 合金急冷薄帯は熱処理を施さなくても保磁力の目標値である $H_{c_j} > 0.5 \text{ MA/m}$ を示すことがわかった。得られた MnBi 磁石の構造について調べたところ、急凝固法で作製した MnBi 磁石はすでに強磁性相である MnBi 相からなることがわかった。この MnBi 磁石の磁化の温度特性はこれまでの Sm-Fe 系磁石や Co-Zr-B 系磁石とは大きく異なり、温度上昇に従って保磁力も残留磁化も増加することがわかった。室温で $H_{c_j} > 2.0 \text{ MA/m}$ の保磁力を有する急凝固法で作製した Nd-Fe-B 合金急冷薄帯は高温 (200°C) では 0.5 MA/m 程度の保磁力しか示さないが、急凝固法で作製した Mn-Bi 合金急冷薄帯は高温 (200°C) で $H_{c_j} > 1.0 \text{ MA/m}$ と非常に大きい保磁力を示すことがわかった。このことより、急凝固法で作製した MnBi 系磁石は高温特性が優れているため、新しい磁石材料として非常に有望であると思われる。

以上の結果より、本研究開発項目における目標である「新規磁石材料としては $B_r > 0.5 \text{ T}$

を有するもの」を満たす新規磁石材料としては Sm-Zr-Fe 系磁石、Fe-Ni 系磁石、Co-Fe-Zr-B 系磁石が、また「新規磁石材料としては $H_cj > 0.5 \text{ MA/m}$ 以上を有するもの」を満たす新規磁石材料としては Sm-Fe 系磁石、Co-Zr-Mo-B 系磁石、Mn-Ga 系磁石、MnBi 系磁石である。特に飽和磁化の高い Fe-Ni 磁石と保磁力の大きい Sm-Fe 系磁石は今後も研究を続けていくことに Nd-Fe-B 磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できる。また、MnBi 系磁石は高温特性が優れているため高温用に限定すればこれも Nd-Fe-B 磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できる。

「①-3 固化形成プロセス法による新規磁石材料の研究開発」

Nd を使用しない希土類系ハード磁石材料である、 SmCo_5 相および $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 相から成る新規複合磁石材料の合成を、メカニカルミリングを用いた固相粉末プロセスにより試みた。溶解法により作製された SmCo_5 組成のインゴットを粗粉砕した粉末およびボンド磁石用 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 粉末（住友金属鉱山株式会社製）を重量比で 1:1 の割合に混合、遊星型ボールミルによりメカニカルミリングを行った。ミリングの容器・ボールには Fe 成分の混入を防ぐため、一般的に用いられるステンレス製ではなく、ジルコニア製の容器・ボールを使用した。ミリング時に溶媒を用いない乾式のボールミルでは、2 相の混合に伴い結晶性の低下が激しく、ハード磁石としての性能を維持することが困難であった。開発項目②「複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発」において、 SmCo_5 粉末のメカニカルミリングの際、溶媒としてヘキサンをを用い、さらに表面活性剤として AOT（ジ（2-エチルヘキシル）スルホコハク酸ナトリウム）を添加する方法が、高磁気特性を有するミリング粉末の作製に有効であることが見出された。そこでまずこの方法で、 SmCo_5 相のみを回転数 300rpm で 12 時間あるいは 18 時間ミリング処理を施したのち、このミリング粉末と $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 粉末

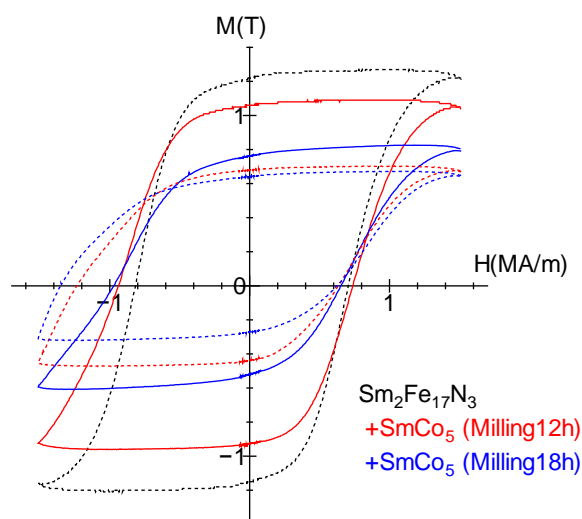


図 1 SmCo_5 相+ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 相複合磁石粉末のヒステリシス曲線（実線）。点線は複合体合成に供した、 SmCo_5 メカニカルミリング粉末および $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 粉末のヒステリシス曲線。

を重量比で 1 : 1 の割合に混合、同様の湿式メカニカルミリングで回転数 150rpm にて 12 時間ミリング処理を行った。得られたミリング粉末は粉末 X 線回折による相同定の結果、 SmCo_5 相および $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 相から成る複合体であり、その他の反応相や不純物相は見受けられなかった。このようにして得られた複合体粉末のヒステリシス曲線を図 1 に示す。複合体の減磁曲線には特に 2 段になるような挙動は見られず、単相試料のような振る舞いとなっていることがわかる。このようにメカニカルミリングを用いた固相粉末プロセスにより、 SmCo_5 相および $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 相から成る新規複合磁石材料を合成できる可能性が示唆された。一方、得られた複合体の最大エネルギー積は、メカニカルミリング前の $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 粉末を下回る値となっており、これは今回の条件で作製された SmCo_5 粉末では十分に高い保磁力を有する試料を作製するには至らなかったことが原因であると考えられ、今後もう少し時間をかけて SmCo_5 粉末単相での磁気特性を最大限に発揮できるミリング条件を見出すことにより、優れた SmCo_5 相+ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 相新規複合磁石材料の合成が可能になると期待される。

「①-4 TEM による新規磁石の組成と構造の評価」

研究開発項目①-1 および①-2 において PLD (Pulsed Laser Deposition) 法および急冷凝固法で試作された 5 種類の新規磁石材料について、保磁力等の磁気特性を効率よく発現させる組織制御への指針を得るために、主に透過電子顕微鏡 (TEM) を用いた詳細な構造解析および組成分析を行った。

(1) [$\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$] 積層型ナノコンポジット PLD 厚膜磁石

SmCo_5 と $\alpha\text{-Fe}$ の複合ターゲットを用いて成膜した PLD 厚膜磁石では、平均膜厚が約 11nm の SmCo_5 アモルファス層と約 7nm の $\alpha\text{-Fe}$ 結晶層が交互に積み重なった積層周期 18nm 程の超多周期積層組織となっていた (図 1)。 $\alpha\text{-Fe}$ 層は堆積方向に $\langle 110 \rangle$ 配向しており、界面近傍では約 30at% の Co 混入が認められた。いずれの層も厚さの変動が少なく極めて平滑な界面を有しており、 μm オーダーの厚膜としては従来にない超多周期堆積膜が形成できていることがわかった。

この超多周期堆積膜にパルス熱処理を施すと、粒径 30-100nm 程の SmCo_5 微結晶粒と $\alpha\text{-Fe}$ 微結晶粒が生成し、これらの微結晶粒が混在したナノコンポジット厚膜が得られることが判明した。この形態変化に伴って、 $\alpha\text{-Fe}$ の $\langle 110 \rangle$ 配向は崩れていき、無配向な SmCo_5 微結晶粒が生成することがわかった。すなわち、熱処理を施すと積層型から分散型に変化し、Nd 系磁石を完全代替する温度特性に優れた [SmCo_5 強磁性相/ $\alpha\text{-Fe}$ 軟磁性相] の分散

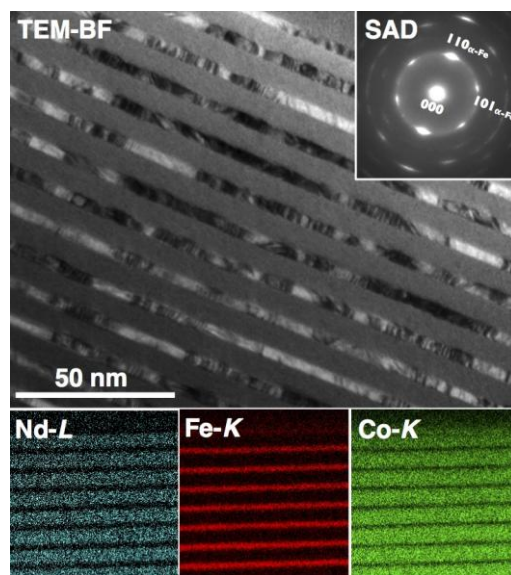


図 1 [$\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$] PLD 超多周期積層膜の断面 TEM 解析結果

型ナノコンポジット厚膜磁石を創成できることが明らかとなった。

(2) [NdFeB/ α -Fe]分散型ナノコンポジット PLD 磁石

Nd_{2.4}Fe₁₄B 単一合金ターゲットを用いて成膜した PLD 厚膜磁石にパルス熱処理を施すと、Ta 基板上に約 1.5 μ m 厚の Nd₂Fe₁₄B 等方粒領域が形成され、その上に堆積方向に垂直に連なった Nd₂Fe₁₄B 微結晶粒と α -Fe 微結晶粒のナノコンポジット厚膜磁石が生成することがわかった。Nd₂Fe₁₄B 微結晶粒は無配向なのに対し、 α -Fe 微結晶粒は堆積方向に $\langle 110 \rangle$ 配向していた。すなわち、単一合金ターゲットを用いるにもかかわらず Nd₂Fe₁₄B と α -Fe の微結晶粒が分離生成し、これらのナノ微結晶粒が堆積方向に連なったコラム状組織が形成される。さらに、 α -Fe 軟磁性粒が配向することで比較的磁化の高いナノコンポジット厚膜磁石が作製できることが明らかとなった。

(3) 急凝固 FeNi 合金磁石

急凝固薄帯の膜面に垂直に伸びた直径約 1 μ m で長さ 20 μ m 以上のコラム状 FeNi 結晶の集合組織が形成されていることがわかった (図 2 上)。いずれの結晶も fcc 構造を有しており、TEM-EDS 組成分析よりほぼ 1:1 化学量論組成を有することが判明した。また、SEM-EBSD 方位解析の結果、各コラム結晶は $\langle 100 \rangle$ 方向が 15° 以内で揃った配向組織となっていた (図 2 下)。ただし、各コラム内はいずれも fcc 格子点を Fe 原子と Ni 原子がランダムに占めたほぼ完全な不規則状態であった。コラム状結晶組織は保磁力発現には有利と考えられるので、高い異方性磁界を発現させるために、各コラム内の Fe 原子層と Ni 原子層を [001] 方向に交互に積層させた L1₀ 型への規則化が望まれる。

(4) 急凝固 Co-Zr 系合金磁石

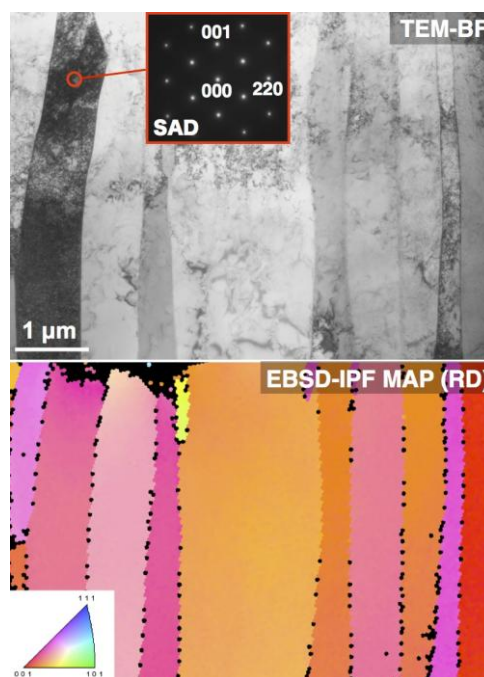


図 2 急凝固 FeNi 薄帯の断面 TEM 像と EBSD 方位解析結果

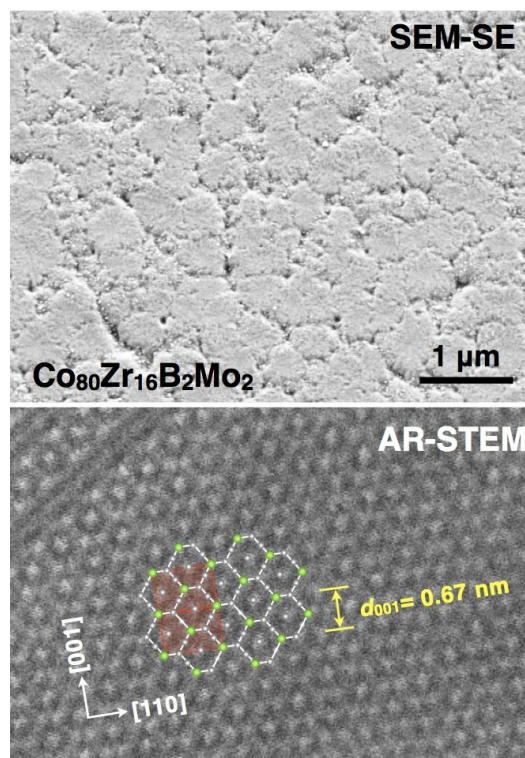


図 3 急凝固 Co₈₀Zr₁₆B₂Mo₂ 薄帯の低加速 SEM 像と STEM 原子分解能像

Co-Zr系急冷薄帯は $\text{Co}_{23}\text{Zr}_6$ 相とCo相がわずかに混在した Co_5Zr 準安定相から構成され、 Co_5Zr 相は Be_5Au 型結晶構造を基本とした特異な積層構造を有することがわかった(図3下)。この薄帯は粒径200nm程の微細な Co_5Zr 結晶粒が数個ずつ集まった $1\mu\text{m}$ 程度の集合粒組織を有しており、2at%B添加により $0.5\mu\text{m}$ 程度まで微細化され、これに伴って保磁力が大きく向上することがわかった。さらに2at%Mo置換により Co_5Zr 粒の結晶性が向上し、保磁力が $H_c > 0.5\text{MA/m}$ に増大することが明らかとなった(図3上)。

(5) 急凝固 Mn-Bi 系合金磁石

図4に示されるように基本的には粒径300nm程のMnBi微細粒から構成されており、これらの微細粒が網目状に連なった組織を有することがわかった。網目状に連なったMnBi微細粒は急冷薄帯の射出方向に $\langle 111 \rangle$ 配向しており、網目の間をやや傾いたMnBi微結晶が埋め尽くしていることも判明した。このような結晶方位の揃ったサブミクロンオーダーの微細結晶粒組織となっているため高い保磁力を発現しているものと推察できる。

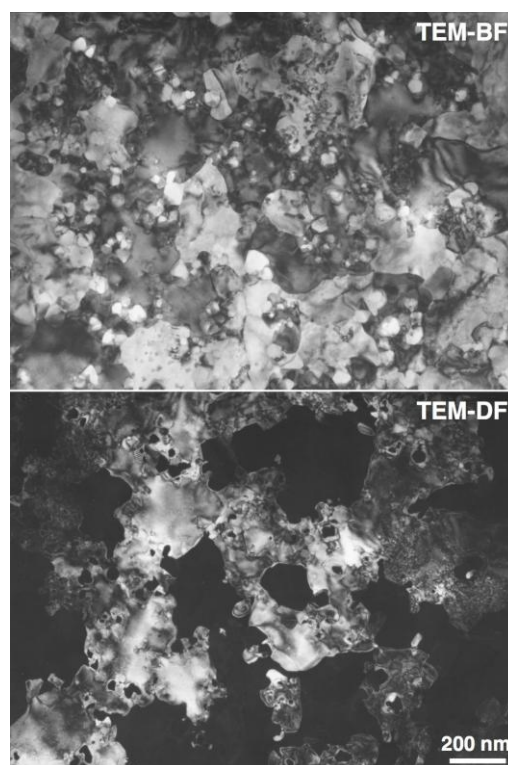


図4 急凝固 MnBi 合金の TEM 明視野像と暗視野像

② 「複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発」

(1) 非平衡状態相の形成による複合組織磁石化技術の研究開発

$\text{Ln}(\text{Co}, \text{Fe})_5$, $\text{Ln}_2(\text{Co}, \text{Fe})_{17}$ ($\text{Ln} = \text{Sm}, \text{Ce}$)系磁性材料、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x\text{C}_y$, Fe_{16}N_2 系磁性材料、MnBi系磁性材料について、各磁性材料の作製手法や組成を最適化し、磁気特性との関係を詳細に調べることで、Nd-Fe-B系磁石の代替となる特性の実現を目標とした。以下に研究内容と結果について述べる。

磁気特性の測定は、粉末試料については1600 kA/mの磁場中で配向した後4800 kA/mでパルス着磁し、試料振動型磁力計(VSM)を用いて行った。また、成形体については1200 kA/mの磁場中で $6\sim 7\text{ t/cm}^2$ でプレスした成形体($5\times 5\times 4.5\text{ mm}^3$)を $350^\circ\text{C}\cdot 2$ 時間の熱処理をした後、パルスB-Hカーブトレーサーを用いて測定を行った。

・ $\text{Ln}(\text{Co}, \text{Fe})_5$, $\text{Ln}_2(\text{Co}, \text{Fe})_{17}$ ($\text{Ln} = \text{Sm}, \text{Ce}$)系磁性材料

本磁性材料については主に SmCo_5 を用い、 SmCo_5 単体での特性の向上、Fe との複合化、また Sn をメタルバイндаとした成形体の磁気特性等について詳細に評価および検討を行った。その他、高価な Sm の代替材料として Ce を用いた CeCo_5 磁性材料や、 SmCo_7 組成を出発原料に用い熱処理することで得られる $\text{SmCo}_5 + \text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 磁性材料についても代替材料としての可能性について検討を行った。

SmCo_5 磁性体粉末は、Sm および Co 金属をアーク溶解することにより SmCo_5 合金としたものを、乳鉢もしくはボールミル粉砕することにより作製した。また、Fe および Sn については、それぞれ鉄カルボニル由来の鉄粉および Sn 金属粉末を用いた。

SmCo_5 の粉砕については、乳鉢粉砕よりもボールミル粉砕の方が磁気特性、特に保磁力が高い値となり、その際さらに界面活性剤として AOT (ジ(2-エチルヘキシル)スルホこはく酸ナトリウム) を用いることで、残留磁化 $M_r = 949 \text{ mT}$ 、保磁力 $H_cJ = 1500 \text{ kA/m}$ を示す粉末が得られた。この SmCo_5 粉末を 5wt% の Sn 粉末と混合し成形体にし、Ar 雰囲気中で 350°C で 2h の熱処理を施したところ、成形体の磁気特性として $B_r = 642 \text{ mT}$ 、 $H_cJ = 2000 \text{ kA/m}$ 、 $(BH)_{\text{max}} = 74.9 \text{ kJ/m}^3$ が得られた。Sn 添加による良好な成形性が確認され、簡便なプロセスで下位グレード相当ではあるが市販 SmCo 焼結磁石に近い特性が得られた。また、成形体の温度特性を測定したところ、 200°C においては市販の Nd-Fe-B 系焼結磁石に匹敵もしくは上回る保磁力と最大エネルギー積が得られた。詳細は後述する。

次にこの SmCo_5 粉末を用い、Fe 粉末とともにボールミル混合をすることで複合化による磁化の向上を試みた。Fe の添加量が多くなると磁化の増加は見られるものの保磁力が大きく低下してしまいが、8 wt% 程度までは保磁力が比較的維持できており、残留磁化も 11% 程度の向上が見られた。また、Sn 粉末を加えた成形体 ($\text{SmCo}_5:\text{Fe}:\text{Sn} = 90:7.5:2.5$ 重量比) は、室温から 200°C までの範囲において、市販の Nd-Fe-B 系焼結磁石 (N52) を超える保磁力を示した。しかしながら、現状では SmCo_5 と Fe 間の相互作用が不十分であると考えられるので、この点を改善することで磁気特性の改善が期待される。

他方、 CeCo_5 については、 $\text{Ce}(\text{Co}_{0.83}\text{Fe}_{0.14}\text{Cu}_{0.17})_5$ の組成を持つ合金をアーク溶解で作製し、 1000°C で 8 時間のアニール処理後に乳鉢もしくはボールミル粉砕をすることで、磁気特性として $M_r = \sim 700 \text{ mT}$ 、 $H_cJ = 319 \text{ kA/m}$ を示す粉末が得られた。また、 $\text{Sm}(\text{Co}_{0.65}\text{Fe}_{0.21}\text{Cu}_{0.05}\text{Zr}_{0.02})_{7.67}$ 合金をアーク溶解後、多段階のアニール処理を施すことで、 $\text{SmCo}_5 + \text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ のセル構造を組織にもつ磁性材料の作製を試みた。磁気特性として $M_r = 830 \text{ mT}$ 、 $H_cJ = 419 \text{ kA/m}$ が得られたが、現状では文献値 ($B_r = 1200 \text{ mT}$ 、 $iH_c = 1030 \text{ kA/m}$) より低く、組成・処理条件等を最適化することで特性向上の余地があると考えられる。なお、後者磁性材料については、 $\text{Sm}_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$ に対し Sm 蒸気を反応させることで、目的の組織を形成する新規な作製手法についても検討を行なっている。

・ $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x\text{C}_y$ 、 Fe_{16}N_2 系磁性材料

$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}(\text{N}, \text{C})_3$ および $\text{Fe}_{16}(\text{N}, \text{C})_2$ について、それぞれ $\text{SmFe}_{18}(\text{N}, \text{C})_3$ および $\text{Fe}_{35}(\text{N}, \text{C})_5$ をクラスターモデルとし、分子軌道法を用いた計算から、両者の構造安定性、磁気モーメント、磁氣的安定性、

磁気異方性についての評価および予測を行った。その結果、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{CN}_2$ および Fe_{16}C_2 が構造安定性が高く、高温仕様磁性材料に適している可能性が示唆された。一方で磁氣的安定性では、 $\text{SmFe}_{18}\text{C}_3$ が $\text{SmFe}_{18}\text{N}_3$ よりも安定であり、また Fe_{16}N_2 が Fe_{16}C_2 よりも安定で bcc-Fe と同程度であるとの予測が得られた。 $\text{SmFe}_{18}(\text{N}, \text{C})_3$ クラスターの磁気異方性については、 $\text{SmFe}_{18}\text{N}_3$ クラスターの方が、*c* 軸異方性が強いことを示す結果が得られた。両クラスターにおける、各原子の磁気モーメントを表 1 および 2 に示す。これらの結果より、炭素もしくは窒素の添加により、Sm および Fe 原子磁気モーメントも増加傾向を示すことが分かり、材料の設計指針が示された。

$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ を炭窒化した材料については、Fe 成分に Co を添加した $\text{Sm}_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}\text{N}_x\text{C}_y$ における過去の実験から一軸異方性をもつ磁性材料となることがわかっている。計算により得られた予測結果をもとに、組成や作製手法を最適化することで、格子を安定化させ高温仕様の磁石材料となることが期待される。

・ MnBi 系磁性材料

希土類を用いない磁性材料として、MnBi 系磁性材料について検討を行った。MnBi は高い保磁力をもつことまた、保磁力の温度係数が正、すなわち温度とともに保磁力が増加することが知られており、高温仕様の磁性材料として期待できる。本項目では、MnBi そのものの磁気特性の評価に加え、低い磁化を補うための Fe との複合化について検討を行った。

MnBi 磁性体粉末は、Mn および Bi 金属をアーク溶解することで得られた合金を、溶融急冷（メルトスピニング法、ロール回転速度 40 m/s）することで薄帯としたのち、290°C、12 h でアニール処理を行うことで磁性相を得た。作製直後の MnBi 粉末の保磁力は 247 kA/m であったが、10 h のボールミル粉碎により 724 kA/m まで向上した。

Fe の添加効果については、3.8wt%の Fe および成形助剤の Sn とともにボールミル混合粉碎したものについて、飽和磁化 $M_s = 540$ mT、残留磁化 $M_r = 456$ mT、保磁力 $H_cJ = 549$ kA/m が得られた。混合粉碎後の MnBi/Fe を成形体とした後、温度特性の評価を行った。結果については次項で述べる。

また、新規な形態（コアシェル構造）の MnBi/Fe 複合磁性粒子の作製方法の開発についても検討を行った。MnFe 共晶合金粉末もしくは同薄帯と Bi 粉末を真空雰囲気中で加熱することで Bi 蒸気

表 1. $\text{SmFe}_{18}(\text{N}, \text{C})_3$ クラスターにおける磁気モーメント

原子	磁気モーメント (uB)	
	$\text{SmFe}_{18}\text{N}_3$	$\text{SmFe}_{18}\text{C}_3$
(Sm 平面上)		
N, C	0.1	-1.5
Sm (中心 Fe)	3.7	6.1
Fe I	3.9	4.0
Fe II	1.2	1.1
(上下 Fe 平面上)		
Fe	4.0	3.1
Fe	2.3	3.0

表 2. $\text{Fe}_{35}(\text{N}, \text{C})_3$ クラスターにおける磁気モーメント

原子	磁気モーメント (uB)	
	Fe_{35}N_3	Fe_{35}C_3
N, C	0.16	-0.41
Fe I (中心 Fe)	3.222	3.22
Fe II	3.474	3.68
Fe III	3.11	3.03

※ bcc-Fe における Fe の磁気モーメントは 2.98 uB (計算値) / 2.3 uB (実験値)

と MnFe 中の Mn とを反応させる作製手法や、Mn、Fe、Bi の各金属粉末をボールミルで混合した後、熱処理する作製方法、FeMn の Mn 成分を酸化したのち CaBi で還元することで選択的に反応させ MnBi 相を生成する手法などを試み、熱処理の温度・時間などの条件を変化させた。現時点では未反応の Bi が残留しているため飽和磁化がおよそ 190 mT、保磁力が 880 kA/m と低く留まっているが、今後作製手法や処理条件を最適化し、反応を促進させることで目的の磁性相が十分に形成されれば特性の向上が期待される。

・ 作製した磁性材料の温度特性

Nd-Fe-B 磁石代替材料としての評価として、作製した SmCo₅ 成形体、SmCo₅/Fe 成形体および MnBi/Fe 成形体（いずれも成形助剤として Sn を含む）の磁気特性の温度依存性を調べ、高温下において N52（市販の高磁化型 Nd-Fe-B 焼結磁石、実測値）、S34GH（市販の高保磁力型 Nd-Fe-B 焼結磁石、カタログ値）および市販 SmCo₅ 焼結磁石（実測値）との比較を行った。またこれらより求めた可逆温度係数を表 3 に示す。

保磁力については SmCo₅ 成形体では温度特性が Nd-Fe-B 系焼結磁石よりも良好であり、180～200°C で S34GH に匹敵する特性（850～950 kA/m）を示した。一方、SmCo₅/Fe 成形体は、S34GH には及ばないものの、室温～200°C の全範囲で N52 を上回る保磁力が得られた。また、MnBi/Fe 成形体は温度とともに保磁力が増加し 170°C で最大値 1400 kA/m を示した。特に MnBi/Fe 成形体の保磁力は、140°C 以上において S34GH のそれを大きく上回ることが確認された。最大エネルギー積については SmCo₅ 成形体が 200°C において N52 に匹敵する値 78 kJ/m³ を示した。MnBi/Fe 成形体では、残留磁化が低いために最大エネルギー積も低くなってしまっているため、高磁化化することで、最大エネルギー積の向上が期待される。

表 3. 磁気特性の可逆温度係数（室温～200°C）

試料	$\Delta Br/\Delta T$ (%/°C)	$\Delta HcJ/\Delta T$ (%/°C)	$\Delta (BH)_{max}/\Delta T$ (%/°C)
SmCo ₅ 成形体	-0.017	-0.28	-0.093
SmCo ₅ /Fe 成形体	-0.028	-0.32	-0.119
MnBi/Fe 成形体	-0.204	0.64*	-0.305
N52	-0.144	-0.48	-0.469
S34GH	-0.092	-0.40	-
SmCo ₅ 焼結磁石	-0.043	-0.29	-0.096

*室温～170°C では 0.95 %/°C

(2) 複合磁石の成形技術の研究開発

本研究で得られる急冷凝固材やメカニカルリング試料は一般に粉末状態であり、磁石化にあたっては固化成形プロセスを経てバルク化する技術開発が重要となる。Nd 代替希土類磁石の有力な候補である Sm₂Fe₁₇N₃ および SmCo₅ は、特に前者においては約 600°C という低い分解温度のために通常の焼結処理によるバルク化は不可能であり、また後者も難焼結性であることから、組織制御など磁気特性の向上のために、より低温での迅速な焼結固化プロセスの開発が望まれる。本研究

では、これら Sm 系希土類磁石相および Fe、Co などのソフト磁性相との複合磁石化を試みていることから、磁石化を目指した固化成型技術の一つとして、純金属相でもあるソフト磁性相の Fe や Co を焼結助材として利用し、Sm 系希土類磁石相単相に対する焼結時の緻密化促進の効果について検討を行った。

図 1 には $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 粉末に Fe 粉末あるいは Co 粉末を重量比 8:2 になるよう混合し、遊星型ボールミルにて 3 時間メカニカルミリングした複合体粉末を、パルス通電焼結装置により 80MPa、100°C/min の昇温速度にて 600°C まで昇温後 5 分間保持した時の収縮曲線を示す。縦軸は収縮量を示しており、値が大きいほど緻密化が進行していることを示している。図から明らかなように、Fe 粉末あるいは Co 粉末を複合化した試料は、昇温段階において $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 単相よりも緻密化が進行しており、600°C 保持の段階において $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 単相の緻密化がほぼ終了するのに対し、複合体試料は緩やかながら緻密化がさらに進行する。その結果、最終的な収縮量には大きな差が生じることが分かった。図 2 には SmCo_5 に Fe 粉末あるいは Co 粉末を重量比 8:2 になるよう混合し、遊星型ボールミルにて 3 時間あるいは 6 時間メカニカルミリングした複合体粉末を、同じくパルス通電焼結装置により同様の圧力下・昇温速度にて 700°C まで昇温後 5 分間保持した時の収縮曲線を示す。図に示している SmCo_5 単相の収縮曲線は 600 度まで昇温したものであり、単純な比較はできないが、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ の場合と同様に Fe あるいは Co を複合化した試料は昇温段階から収縮が促進されており、温度保持後も緻密化が進行していることがわかる。 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ および SmCo_5 どちらの試料も Co 複合材の方が Fe 複合材よりもわずかに収縮量が大きくなっていることが分かったが、これは使用した Co 粉末に対して Fe 粉末の表面酸化の度合いが

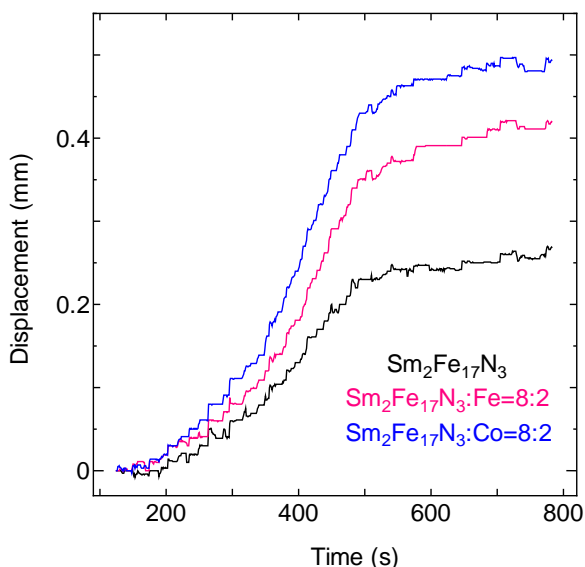


図 1 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 粉末および Fe、Co を重量比 8:2 にて複合化した粉末のパルス通電焼結による焼結時の収縮挙動。

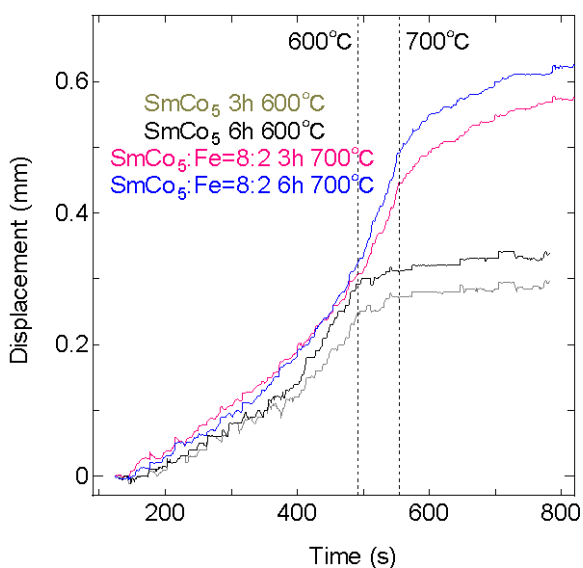


図 2 SmCo_5 粉末および Fe、Co を重量比 8:2 にて複合化、ミリングを 3 および 6 時間施した粉末のパルス通電焼結による焼結時の収縮挙動。

大きかったためではないかと推察している。このように難焼結性の $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ および SmCo_5 に Fe や Co を複合化することで焼結時の緻密化を大きく促進できることが明らかとなった。これらの結果は複合磁石のソフト磁性相として添加される Fe や Co が、焼結固化による磁石化の際にはハード磁性相の結合材の役割を同時に果たし、その緻密化促進に優れた効果を発揮することを示しており、ソフト/ハード複合磁石の磁石化プロセスとして有利な結果をもたらすものであることが明らかとなった。

2.2 知的財産権等の取得及び標準化の取り組み

現在までの成果発表に関してまとめると、以下の表Ⅲ-2-1 のようになる。

表Ⅲ-2-1 本研究における成果発表のまとめ

研究開発項目		H 2 3	H 2 4
⑨-3-2	特許出願	0	0
	論文	0	8
	研究発表・講演	10	19
	受賞実績	2	1
	新聞・雑誌等への掲載	1	0
	展示会への出展	0	0

IV. 実用化の見通しについて

1. 実用化の見通し

1. 1 成果の実用化可能性

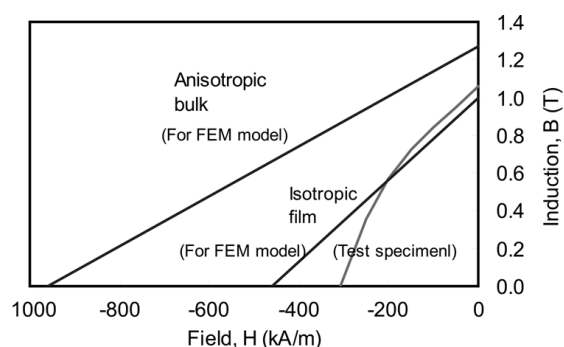
SmCo₅/α-Fe ナノコンポジット磁石

等方性 Nd-Fe-B/α-Fe ナノコンポジット厚膜磁石については、多極着磁の容易性から、小型高トルクの小型モータへの応用が可能であることが報告されている。図1は、Nd-Fe-B焼結磁石（単極対着磁）とNd-Fe-B/α-Fe ナノコンポジット厚膜磁石を積層して得た1mmφ×1.5mmLのマグネットロータのトルクを比較したものである。厚膜磁石で約1.7倍のトルクが得られている。150°C程度で使用する設計では、研究で創製したSmCo₅/α-Fe厚膜磁石の残留磁化が、Nd-Fe-B/α-Fe厚膜磁石の残留磁化を上回るため、SmCo₅/α-Fe厚膜磁石に優位性がある。

また、昇温した基板の上に堆積させたSmCo₅はその磁化容易軸が面内に配向することが知られている。その技術を本研究のSmCo₅/α-Fe厚膜磁石に適用すれば、残留磁化をさらに増加させることが可能であり、室温においてもSmCo₅/α-Fe厚膜磁石に優位性が出る可能性もある。

SmCo/α-Fe バルク磁石

人工積層構造でバルク磁石を作ることには困難が多いが、コアシェルタイプのナノ粉末を作製できれば、本研究で予測した特性に近い特性が期待される。この粉末は、高温で使用される(Nd, Dy)-Fe-Bを代替する磁石として実用化の可能性はある。

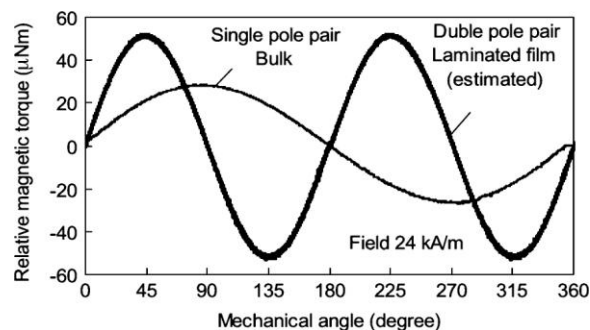


急冷凝固法により探索・開発した新規磁石

本研究開発項目における目標である「新規磁石材料としてはBr > 0.5 Tを有するもの」を満たす新規磁石材料としてはSm-Zr-Fe系磁石、Fe-Ni系磁石、Co-Fe-Zr-B系磁石が、また「新規磁石材料としてはHc_j > 0.5 MA/m以上を有するもの」を満たす新規磁石材料としてはSm-Fe系磁石、Co-Zr-Mo-B系磁石、Mn-Ga系磁石、MnBi系磁石である。

特に実用化の見込みとしては

- (1) 飽和磁化の高いFe-Ni磁石
- (2) 保磁力の大きいSm-Fe系磁石



これらは、は今後も研究を続けていくことに Nd-Fe-B 磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できる。

また、MnBi 系磁石は高温特性が優れているため高温用に限定すればこれも Nd-Fe-B 磁石に匹敵する永久磁石になることが期待できる。

1. 2 波及効果

電子デバイスの小型化に貢献する「小型磁石の開発」、すなわち「ある程度の領域に磁界を発生する用途」が主となる小型磁石の応用を鑑みると、数 μm 以上の厚みが所望される。成膜技術を用いた小型磁石の作製に着目すると、高い成膜速度を有する手法が実用化に向けての一つのポイントになる。そのような観点より、我々は PLD (Pulsed Laser Deposition) 法を用いた厚膜磁石の開発において、ターゲットに高いエネルギーを照射する事により、数 $10 \mu\text{m/h}$ 以上の比較的高い成膜速度を実現してきた。更に、成膜後のポストアニーリングや基板加熱といった熱処理を通じ、「等方性」ならびに「異方性厚膜磁石」を作製すると共に、それらの厚膜磁石を「アキシアルギャップ型 DC ブラシレスモータ」や「摩擦駆動型高トルクモータ」に応用してきた。本研究で作製した Sm-Co/Fe 積層型厚膜磁石の応用として、我々はその「面内方向の等方性磁石膜」の着磁方向の高い自由度に基づく高トルク化の可能性に着目し、デジタルカメラ内のフォーカス用モータに内蔵される超小型モータのロータ部における利用を検討している。その結果、応用に際しての具体的な磁気特性の目標値である残留磁化 0.9 T を充分達成し、今後更なる「厚膜化」や「打ち抜き加工などの機械的特性の評価」を通じて実機応用への検討を進める予定である。

さらに、人工積層構造 $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石の研究を通じて、高異方性・高キュリー温度を有する合金と高飽和磁化合金を組み合わせ磁石の Nd-Fe-B 磁石代替磁石の可能性を示すことができた。これにより、コアシェルタイプの $\text{SmCo}_5/\alpha\text{-Fe}$ 磁石などのバルク磁石を目指した研究が加速すると考えられる。さらに、他の高異方性合金 (Sm-Fe-N など) についても Nd-Fe-B 磁石代替磁石としての可能性を探る研究が加速することが期待される。

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム 量低減代替技術の開発

Ⅲ. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果

セリウムは、世界的に需要増が見込まれる自動車及び関連するガソリンエンジン排ガス浄化用助触媒として高性能材料が大量に用いられている。本研究開発は、排ガス浄化向けのセリウム系材料を対象に、セリウム使用原単位を30%以上低減するため、以下の3つの研究項目により推進し、セリウム低減触媒材製造技術を開発した。①セリウム低減触媒および不使用触媒について、基本原理を確立、②セリウム低減触媒および不使用触媒について、大量調製技術を確立、③セリウム使用量を30%以上低減した、ガソリン車向け排ガス浄化触媒を製作、評価し、最終目標の達成を目指した。①→②→③の流れに沿って、また期間中に①、②、③相互の関係を保ちながら、材料の設計、基本原理から、合成基礎技術、企業内大量製造技術、酸素貯蔵性能の向上、最適化、触媒性能の向上、触媒化、触媒部品化、車載、エンジン試験まで行ったものであり、ほぼ当初計画通りに実施した。(実施状況)

本成果における目標値と成果の関係は以下のものである。

まず、セリウムを低減した触媒材料の開発に関する基礎技術を、セリウム表面濃化型(コアシェル型)の概念のもとに、モデル材の機能を検討した。その基礎物性を把握してシングルナノレベルの制御を可能にする基本的な合成法を確立した(図4)。(①の成果)

次に、それを実現するための製造方法を企業の設備を用いて検討することによって、実現可能なセリウム低減材の大量調製技術を開発した。セリウム低減30%以上酸素貯蔵能材の製造技術については、ノリタケカンパニー法(自社ジルコニア材利用)およびアドマテックス法(ゾルを用いる)によって、新規酸素貯蔵能材の試作を行い、触媒材向けに製品レベルで提供できる基礎技術を確立した。(②の成果)

さらに、この材料を利用した触媒ならびに触媒部材を試作し、モデル排気ならびに実車載したエンジン排気浄化の性能を調査し、セリウム低減材の有効性を確認して開発基礎技術の確立を図った。三元活性の評価(モデル排気動的、A/F制御下)によって、触媒性能を高めるとともに、セリウム低減30%以上の新規試作材(ノリタケ、アドマテックス製試作品)を搭載した白金系触媒(大型ハニカム部品)を設計した。同材による実車載エンジンによる法定モード試験をクリアするにいたった(図5)。(③の成果)

以上のように、事業では、目標であるセリウム30%低減した触媒材の開発を達成し、その設計概念の提供、さらに大量製造方法、さらにはそれを用いた貴金属触媒において、目標の30%低減が達成された排ガス浄化技術を開発した。最終的には、実車に搭載した触媒コンバータを用いてガソリンエンジン排ガス浄化性能を試験し現行法定モードをクリアする開発材を提供できた。最終目標であるガソリンエンジン車載用排ガス浄化触媒(白金等を含む最終部品として)の全体としての目標を30%低減において実施し、この目標値が達成されたと判断される。(全体成果)

なお、本開発材技術は、シングルナノセリアを高温域でも安定に触媒機能(酸素貯蔵能ほか)を有したままの状態を維持した点に特徴がある。このような気相に開かれた状態でナノ高温安定化を実現したのは従来にない材料技術(従来のセリアジルコニアは基本的には均一固溶体)、その原理確立は世界最高水準である。コアシェル型触媒微粒子材は、貴金属安定化にも有効なことから、新たな触媒技術を先導することが期待される。また、本成果はガソリンエンジン排気処理用触媒の材料として広く適用性があり、新規材としての応用展開の可能性がある。また、セリウム低減の手法のみならず、新規触媒材の設計概念の提案ともなっている

点にも特徴があるので、現市場の材料の代替のみならず、そのナノ材料(設計コンセプトを含む)や合成技術が新規市場の拡大に寄与できるものとなっている。(波及的成果)

以上のように、事業の成果は、単にセリウム30%低減した材料基礎技術の達成し、現行並びに将来排気処理技術全般に展開できるとの期待がもてる技術成果を得たと考えている。

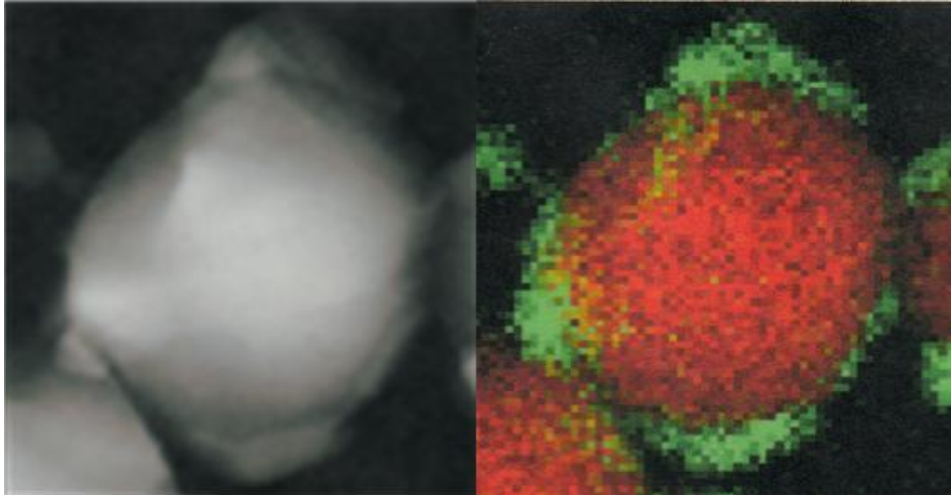


図4 1000°C熱耐久後のコアシェル型セリアジルコニア微粒子材の電子顕微鏡(STEM)像と対応する視野の元素マップ像
(赤: Zr, 緑: Ce、粒径30nm)

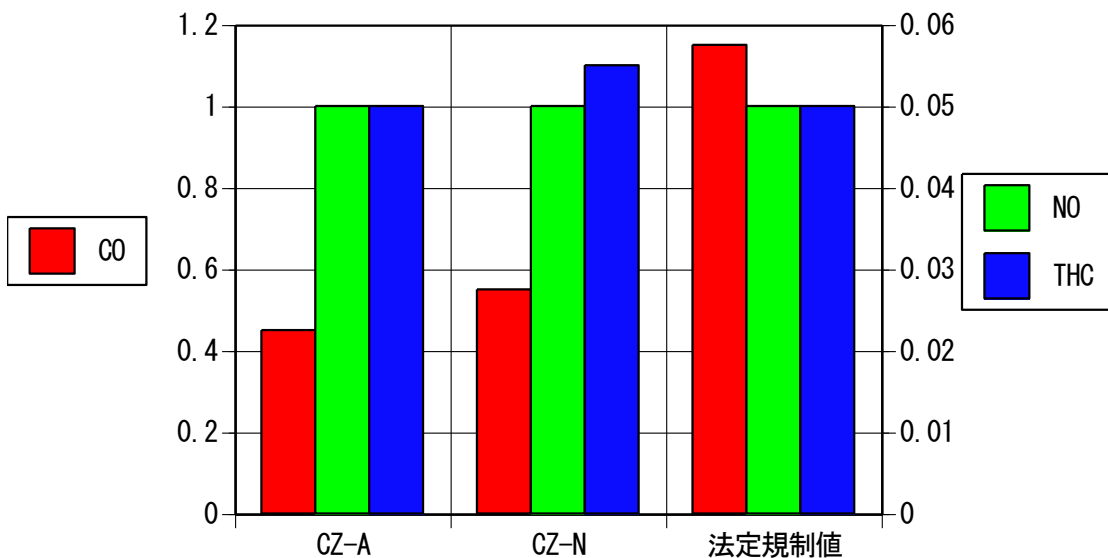


図5 国内規制 JC-08 モード走行試験結果
* 触媒エンジン直下の1個のみ搭載時の性能
(CZ-A: アドマテックス製CZ使用触媒、CZ-N: ノリタケ製CZ使用触媒)

表1 事業全体の成果

目 標	研究開発成果	達成度
<p>①セリウム使用量を低減した微粒子触媒材の開発 目標:セリウム低減30%以上の微粒子材料の設計と基本合成技術</p>	<p>・セリウム低減30%以上の表面濃化型(コアシェル型)の新規セリアジルコニア材、その基礎物性および応用(企業内)での基本合成法確立</p>	<p>① 達成</p>
<p>②セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能材の開発 目標:セリウム低減30%以上の酸素貯蔵能材の触媒の開発とその大量調製技術を確立する。</p>	<p>・セリウム低減30%以上酸素貯蔵能材の製造: ノリタケカンパニー法(自社ジルコニア材利用)およびアドマテックス法(ゾルを用いる)の新規酸素貯蔵能材の試作</p>	<p>② 達成</p>
<p>③ガソリン車排ガス浄化触媒の開発 目標:セリウム低減30%以上のガソリンエンジン排ガス浄化触媒の製作、評価する。</p>	<p>・三元活性の評価(モデル排気動的、A/F 制御下) ・セリウム低減30%以上の新規材を搭載した白金系触媒(大型ハニカム部品) ・同材による実車載エンジンによる法定モード試験をクリア</p>	<p>③ 達成</p>

2. 研究開発項目毎の成果

2. 1 研究開発項目毎の成果(要約)

事業の研究開発は、①セリウム低減微粒子材(コアシェル型)の基本原確立、②酸素貯蔵能と基本触媒性能の向上(セリウム低減試作品の開発)、③三元触媒の設計、実験室性能評価、エンジン試験評価による法定モード評価の達成の順で進行した。表2に、研究内容、成果とその達成度をまとめた。さらに、以下2.1.1~2.1.3に、その成果を説明する。

表2 事業研究開発項目毎の成果表

目 標	研究開発成果	達成度
<p>① セリウム使用量を低減した微粒子触媒材の開発</p> <p>①—1 セリウム低減微粒子材の基本原理確立 目標：セリウム成分を表面にナノレベルで濃化するコンセプトの実現可能性検討</p> <p>①—2 セリウム低減微粒子触媒材の合成技術確立 目標：セリウム濃化形態形成ならびにその実材開発を遂行する基本原理確立</p> <p>①—3 セリウム不使用微粒子触媒材の合成技術確立 目標：セリウム不使用材の可能性</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・OSCを担うセリウム等とジルコニア（一部セリウムを含む）担体との複合形態において、セリウム成分を表面にナノレベルで濃化するコンセプトによる新材料の原理を確立した。 ・シングルナノメータセリア（シェル）と数十ナノメータジルコニア（コア）の複合化、ラボレベル合成技術を確立した。 ・高OSCを発現機構、その安定性ならびにその実材開発を遂行する基本原理を検討した。 ・セリウム不使用材の基礎検討：鉄系、アルミナ系、プラセオジウム系の合成とOSC基本特性を評価した。 	<p>①—1 達成</p> <p>①—2 達成</p> <p>①—3 達成</p>
<p>②セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能（OSC）材の開発</p> <p>②—1 複合ナノ粒子のOSC触媒材化と開発 目標：セリウム成分ナノレベル濃化材のOSC触媒材化</p> <p>②—2 OSC触媒材の最適化 目標：実用材料として最適化した開発技術確立（具体的な触媒材の粉末レベルの試作）</p> <p>②—3 白金担持OSC触媒開発 目標：白金を担持OSC材の開発のための検討</p> <p>②—4 セリウム不使用材のOSC評価と開発 目標：セリウム大幅低減もしくは不使用材の可能性判断</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・セリウム低減を図った複合微粒子を高OSCを具現するナノ及び原子レベルでの微細構造とOSCの相関を明確化、性能把握、セリウム利用率80%以上を達成 ・実用材料として最適化した開発技術確立と、具体的な触媒材の粉末レベルの試作を行い、複合化微粒子におけるOSC性能を最大限に引き出す研究を展開した。30%低減化した、一次、二次、最終候補品を提示し、触媒化工程に展開した ・白金を担持したOSC材を対象にして、触媒化にとって必要な触媒活性を取得、その基本的OSC特性との関係について評価し、白金添加による高性能化現象（セリウム表面濃化による） ・高OSCの鉄-セリウム系を見出した、熱安定性の観点から、実用レベルにないと判断 	<p>②—1 達成</p> <p>②—2 達成</p> <p>②—3 達成</p> <p>②—4 達成</p>

表2続 事業研究開発項目毎の成果の表(続き)

目 標	研究開発成果	達成度
<p>③ ガソリン車排ガス浄化触媒の開発</p> <p>③-1 OSC触媒技術の開発 目標： 開発した材料のOSC評価</p> <p>③-2 プロトタイプ触媒の試作 目標：ハニカム型触媒の試作</p> <p>③-3 プロトタイプ触媒の評価 目標：実車レベルハニカム型触媒プロトタイプの評価</p>	<p>・ 開発した材料および新OSC材を用いた触媒の調製（触媒として30%低減）後での触媒物性の観点から評価を行い、性能評価と改善、大量製造上の問題点を明確にした。</p> <p>・ 現状の生産レベルの触媒と同等の製造条件の触媒調製検討、最適な触媒組成物ならびに小型および大型ハニカム型触媒の試作</p> <p>・ 実触媒化段階を想定した実車コンバータ向け高精度のハニカム型触媒部品試作、実車搭載エンジンによる法定モード試験を行い、基準をクリアした</p>	<p>③—1 達成</p> <p>③—2 達成</p> <p>③—3 達成</p>

2. 1. 1 セリウム使用量を低減した微粒子触媒材の開発（研究項目①）

OSCを担うセリウム等とジルコニア（一部セリウムを含む）担体との複合形態において、セリウム成分を表面にナノレベルで濃化するコンセプトによるセリウム低減材の開発を目指し、高OSCを発現する複合微粒子基本材へのセリウム濃化形態形成ならびにその実材開発を遂行する基本原理を確立した。

①—1 セリウム低減微粒子材の基本原理確立（名古屋工業大学）

ガソリン車排ガス技術で基本材料であるセリアジルコニア触媒材料で、全体均一組成とする材料と比較して、表面にナノレベルで濃化（コアシェル型）した場合のセリウム低減効果の原理的な確立を行い、あわせて表面にセリウムをナノセリア層として濃化する合成法を確立した。

表面におけるCeZr系の最適化をモデル系により行い、セリウム/ジルコニウム量に依存するOSC特性の基本データを収集したのち、その形態の特徴、粒径・比表面積や酸素放出吸収特性、セリウムの状態等の特徴を把握し、材料設計の観点から基本技術確立を行った。

セリウム利用率の観点から、ジルコニア側すなわちセリア低減領域では利用率が高く、セリウム少量領域20%付近で最も優れた利用率を示すことを明らかにした。

原子数層でのセリアによる表面修飾とそれに触媒性能向上の可能性を見出し、排ガス処理用触媒のOSCを担うセリウムのレドックスにともなう多量の格子酸素関与（セリアジルコニア固溶体と同様）と、反応に関与する格子酸素の敏速な放出吸収を考慮して、シングルナノレベルセリア粒子を利用する検討を行い、その合成法を開発した。

さらに、ナノセリア粒子をジルコニア上に配置するコアシェル型複合微粒子材料の開発を行い、本開発のコンセプトを実現するモデル材を開発した。

①—2 セリウム低減微粒子触媒材の合成技術確立（名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス）

①—2—（1） ノリタケ法合成技術（ノリタケカンパニーリミテド、共立マテリアル、名古屋工業大学）

ジルコニアに対して水溶液からのセリア沈殿プロセスを用いる製造方法を開発した（ノリタケ法）。

原料ジルコニアと沈殿条件（pH等）を調整して、セリア添加量の異なるセリアジルコニア複合粒子を合成した。制御パラメーターによって、セリア添加量を制御できることが明らかとなった。

まず、名古屋工業大学にて比較的セリアの少量域での関係を調べて微粒子表面でのセリア濃化技術の基礎検討を行った。これを受けてノリタケカンパニーで、様々なセラミックス合成手法を駆使して、比較的セリウム量の多い領域並びに大量製造法をねらった製造方法を開発した。

その結果、5～40%（セリウムジルコニウムのセリウム分率）の広いセリウム組成で連続的にセリア組成を精密制御できることを見出し合成基礎技術を確立した。

①—2—（2） アドマテックス法合成技術（アドマテックス、名古屋工業大学）

本開発コンセプトを実現するため、名古屋工業大学では、別の手法でセリアあるいはジルコニアの配置による表面構造制御を検討することとした。第一に、従来材であるセリアジルコニア固溶体触媒材を利用して、これに対してジルコニアナノ粒子を過剰に添加して、セリア量を低減する材料を合成する手法、ならびに第二の方法としてナノレベルでゾル混合プロセスを検討した。

これらの方法をアドマテックスにて詳細に検討して、独自の設備によって研究開発の展開を行い新規な合成プロセスを開発した。この方法では、ゾル状態の粒子の組織再編とシングルナノ粒子が表面に付着成長によるコアシェル化現象を種々の操作パラメーターにしたがい系統的に制御できるようになった。とくに、水系ナノレベル分散状態、複合粒子の合成ができ、そのプロセスは大量合成に適することが明らかになった。

本方法で、5～40%（同上）の広いセリウム組成で連続的にセリア組成を精密制御できることを見出し、新たな合成基礎方法を確立した。

①—3 セリウム不使用微粒子触媒材の合成技術確立（名古屋工業大学、ノリタケカンパニー）

セリウムの30%以上を大幅に低減、もしくはセリウムを全く使用しないOSC材の開発に供しようかどうかの可能性を検討した。対象元素は、鉄、アルミニウム、プラセオジウム、クロミウムであり、それぞれ異なる観点から実施した。

鉄／セリア系において、鉄の還元条件不安定化を改善する可能性を見出した。

セリア／アルミナ系において、セリアの分散性改善と界面での改良効果の可能性を見出した。

プラセオジウム／ジルコニア系で形態制御微粒子合成した。

クロミウム／ジルコニア系で新材料を作製した。

2. 1. 2 セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能材の開発（研究項目②）

②—1 複合ナノ粒子のOSC触媒材化と開発（名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス）

①で達成したセリウム低減を図った複合微粒子を、実用レベルのOSC材とするため、とくに触媒材として高OSCを具現するナノ及び原子レベルでの微細構造とOSCの相関を明確化にした。セリアナノ粒子合成を利用するセリアナノ粒子化ジルコニア複合材のOSC特性を評価し、 $Zr : Ce = 8 : 2$ （モル比）付近の複合粒子で、セリウム利用率80%以上でかつ400℃以下の温度から水素還元挙動が観測され、OSC発現温度の低温化現象が示唆する現象を見出した。

これは表面に配置したナノ粒子に起因する効果と考えられるので、本開発で検討したナノ粒子複合構造体の特徴を活かし可能性ある効果を示唆する現象を見出した。

また、ノリタケカンパニーリミテドおよびアドマテックスで合成したセリア低減材については、そのつど、系統的に、名古屋工業大学で基本OSC評価を行うことで、合成—性能間の相関を、多量のデータ取得により調べた。これによって、最適合成条件、組成、原料材（ジルコニア等）、処理条件をノウハウを取得するとともに、本合成方法において、従来の均一組成物（沈殿法ベース）と異なる、低温化や機能分担の効果を見出すことができた。

これらの特徴を活かした新規触媒材、その製造方法については、各企業にて知財化した。

②-2 OSC触媒材の最適化（ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス、名古屋工業大学）

②-1の検討を受けて、事業実施期間内にハニカム触媒を製作するために必要な試作材（三段階で）を開発した。一次試作品、二次試作品、さらに最終試作品に至るOSC触媒材の最適化を、ノリタケカンパニーリミテドおよびアドマテックスで行った。

複合化微粒子におけるOSC性能を最大限に引き出す検討を名古屋工業大学の触媒評価により行った。

二次試作品を名古屋工業大学およびキャタラーにて触媒化検討を行い、他の材料を混合した実触媒仕様で、小型ハニカム製作を行った。これによって、ハニカム化時に必要な材料特性を最適化した。これらにより、さらに実用材料として最適化製造法（ノウハウを含む）、具体的な触媒材の粉末レベルの試作提供できるようになった。

製品ロットは5～20kg提供を可能にした、事業内でこのレベルの大量製造法による開発を達成した。

試作材は、2社ともに、セリウム含量22%製品であり、従来材（40%とした場合）から見て約46%低減材であった。（セリウム低減目標の達成）

これらの材料は1000℃熱耐久後においてコアシェル型複合微粒子であった。

以上により、大量製造法によって基本コンセプトを具現する製品レベル試作品を開発した。

②-3 白金担持OSC触媒開発（名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス）

白金を担持したOSC材を対象にして、触媒化にとって必要な触媒活性を取得するとともにその基本的OSC特性との関係について評価した。

セリアジルコニア（セリウム25%含有均一固溶体）においてOSC特性に加えて白金分散性向上効果を有することが示された。OSC触媒としてセリアが少量白金を分散させ、これが高温まで維持する効果を有していることが明らかになった。

これを踏まえて、本事業で開発した材料および新OSC材を用いた触媒の調製後での物性変化の観点から評価を行い、白金触媒として上記②-2での成果を展開してOSC性能をさらに高度化することを実施した。コアシェル構造としながらも、ジルコニア表面にセリア成分を供給した状態で複合化すると酸素放出能の改善（低温化）と炭化水素浄化（完全酸化）活性向上ができた。これによって、本開発品の白金触媒とした際の優位性を明らかにした。

②-4 セリウム不使用材のOSC評価と開発（名古屋工業大学）

①-3で検討した元素群、材料の組み合わせで、セリウムの大幅低減もしくは完全代替材に向けた新開発材の基礎特性を把握した。鉄-セリア系において、鉄の還元条件不安定化を改善するOSC触媒材の可能性を見出した。しかし、現行OSC（セリアジルコニア系）の同水準ですぐ対応しうる不使用材はないとの判断をした。

2.1.3 ガソリン車排ガス浄化触媒の開発（研究項目③）

③-1 OSC触媒技術の開発（名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス、キャタラー）

開発した材料および新OSC材を用いた触媒の調製後での触媒物性の観点から評価を行い、性能評価と改善、大量製造上の問題点を明確にした。

キャタラーに供給したノリタケカンパニーリミテドならびにアドマテックス製CZ（最終候補品）を用いて、その40wt%を含有させアルミナ/開発CZ材/白金触媒作製した。これらの触媒にお

いて、現行市販CZ材（固溶体、希土類含有量25%）に比べて、本開発品のOSC低温化現象を見出し、OSC触媒としての優位性を明らかにした。

三元触媒活性においては、本開発品は現行品に比べ、A/Fの酸素不足域での活性（酸化触媒活性）に優れることが明らかになり、セリウム表面濃化による白金触媒の高活性化を示唆する優位点を見出した。

また、モデル排気での動的条件下での三元活性でNO_x（窒素酸化物）の浄化活性の低下防止効果において優れていることを明らかにして、OSC触媒の観点からも酸素貯蔵能の寄与を向上させる性能を見出した。

③-2 プロトタイプ触媒の試作（名古屋工業大学、ノリタケカンパニーリミテドおよび共立マテリアル、アドマテックス、キャタラー）

②-2で検討した二次候補品ならびに最終候補品をキャタラーへ供給し、小型、大型ハニカムのプロトタイプ触媒の試作を実現した。前者については小型ハニカム試作工程にて製作での問題点抽出の観点から、粉末性状を改善できた。後者については、大型ハニカムの製作を行い、車載用触媒コンバーター部品試作を行うとともに、三元触媒浄化性能を評価した。

以上により、現状の生産レベルの触媒と同等の製造条件の触媒調製を行えること、また最適な実触媒組成物でのハニカム型触媒の試作物の供給を達成した。

③-3 プロトタイプ触媒の評価（名古屋工業大学、キャタラー）

車載実触媒化を想定し、高精度のハニカム型触媒プロトタイプを試作、評価することを目的として、プロトタイプ触媒の評価を行った。

ラボレベル評価により、触媒の三元触媒活性においては、A/Fの酸素不足域での活性（酸化触媒活性）、動的条件下での三元活性でNO_x（窒素酸化物）の浄化活性の低下防止効果において優れていることを明らかにして本触媒の特徴を明らかにした。

実車レベルのハニカム型触媒を想定し、車両販売に不可欠な国内法定モードでの評価試験を実施した。

エンジン直下の1個およびエンジン直下に加えて市販アンダーフロア（UF）との組み合わせで、通常の自動車法定モード試験結果では、規制三元成分（CO、HC、NO_x）いずれも法定規制値をクリアする、実用性のある触媒を開発した。

2.2 知的財産の取得及び標準化の取り組み

表3 特許、論文、外部発表等の件数（内訳）

区分 年度	特許出願			論文		その他外部発表 （プレス発表等）
	国内	外国	PCT※出 願	査読付き	その他	
H22	0件	0件	0件	0件	0件	0件
H23 (H24含む)	9件	0件	0件	14件 (投稿中含む)	6件	40件

(※Patent Cooperation Treaty :特許協力条約)

知的財産権等については、基礎段階のものは大学から、また、事業内分担の関係から製品技術や試作品基本技術では企業—大学間で検討して共願、単願として出願した。得られた研究開発の成果は海外で利用される可能性もあるのでその後の対応については今後フォローしてゆく。

IV. 実用化の見通しについて

1 実用化の見通し

1.1 成果の実用化可能性

セリウム30%低減した触媒材の開発を達成し、その設計概念の提供、さらに大量製造方法、さらにはそれを用いた貴金属触媒において、目標の30%低減が達成される排ガス浄化技術を開発した。最終目標であるガソリンエンジン車載用排ガス浄化触媒(白金等を含む最終部品として)の全体としての目標を30%低減において実施し法定モードをクリアする水準の性能を得た。したがって、事業内の目標値は達成されたと判断されるが、市場での実用化の観点からは、熾烈な製品化競争による高性能化が求められる分野であり、市場状況には十分な対応が必要となる。

各研究項目に沿った事業化の可能性については下記のようなものである。

① セリウム使用量を低減した微粒子触媒材とその合成技術の開発

セリウム低減微粒子材の基本原理は、セリアナノ粒子ならびに母材ジルコニアの合成、製造技術であると同時に、セラミックス、触媒分野の新規ジルコニア等微粒子材として波及効果を望める。触媒メーカーからの要請等に対応できる水準を維持しているため、原料供給の観点から事業化可能性があると判断している。

② セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能(OSC)材の開発

OSC触媒材化と開発において新概念による材料を提供しており、さらなる実用材料として最適化した開発によって、市場展開の可能性がある。これまでのセリアジルコニア系酸素貯蔵能材が過去 20 年以上にわたって市場の中心材料であることから、現行システムがこの従来セリアジルコニア系を必修として構築されている。したがって、従来材と同等の使用要件を満たす現行システムへの適合と将来エンジンシステムへの適応(新規市場)の双方から、事業化可能性がある。

しかし、セリウム不使用OSC材については、現状では排気規制への対応から高耐久性の観点から市場にすぐ受け入れるだけの余裕はないと判断される。将来、新仕様のエンジンシステムにおいてその可能性が残されていると判断している。

③ ガソリン車排ガス浄化触媒の開発

セリウム低減30%以上のガソリンエンジン排ガス浄化触媒の製作に成功しており、現行エンジンならびに将来エンジン装置や新しく規制対象となるエンジン装置の排気処理への応用を含めて、実用化の可能性が有る。

1.2 実用化シナリオ

本研究開発成果の対象となる産業界利用としては、まず直接的には、現行ガソリン車用三元触媒が挙げられる。セリアジルコニア系酸素貯蔵能材は、過去 20 年以上にわたって市場の中心材料であり、これへの代替、市場シェアの確保が期待される。車載用触媒は、セリア系材料を含む貴金属等またハニカム部材までの全体部品の開発が展開されるので、現行開発体制に対応し、自動車メーカー各社の継続した対応も必要となる。さらなる材料技術の向上、性能向上のためには、それぞれに設計の異なる各社(自動車メーカー)エンジンシステムとのすり合わせ期間が必要となる。

(ステップ1:本プロジェクト目標達成)

・ 各種触媒材料、OSC 材、基本三元排気浄化技術などの基本的な要素技術を開発し、セリウムの低減を達成することで、本プロジェクト内の目標を達成し新規概念による性能の保持した触媒の性能、水準達成(実エンジン)に目処を付けている。

(ステップ2:材料製品の開発(展開))

・ これまでの基本技術をもとに平成24年度から材料の現市場仕様の調査を基にしながら、本開発材、そのコンセプトを中心とした研究開発、商品化開発を開始し、最終目標を超えるセリウムの30%以上を低減した新規材の製品化技術開発を目指す。これと並行して、生産技術の改善検討を継続し、材料メーカー側から触媒材料と触媒製造技術の製造における製品適合への検討を行う。

また、この段階では、自動車メーカー側にて現行システムの基準により、新規材の触媒化、評価を随時行う。
(ステップ3:事業化)

・平成27乃至28年度には本格的に触媒製品としての実用化検討に移行する可能性を検討する。ガソリン車に関する排ガス規制と各メーカーによる自動車開発状況に合わせた製品化をねらって、平成28年度には提案商品化検討を終了し、国内外メーカー向けの触媒材として商業生産の開始を目指す。

表4 実用化シナリオの年次表

	22年度	23年度	24年度	25年度	26年度	27年度	28年度
本プロジェクト	←→						
製品化開発			←→	←→	←→	←→	←→
			製品化企画—開発投資	(市場対応)	設備投資	パイロット製品化	生産・販売
製品(上市)生産							←→
							車載技術製品

1.3 波及効果

本研究開発による直接的効果として期待される規模は、ガソリン車国内生産台数約1000万台(2008年度)で、全触媒のセリウム30%が低減、本材同等品に代替されるとすると、年間で300トンのセリウム(セリア)の使用量削減が可能となる。

- ・セリウム低減化環境技術(利用拡大)による経済活動の活性化
- ・触媒市場(国内の5倍以上)増加による国内産業の活性化
- ・触媒材料技術のライセンス供与及び関連事業の拡大
- ・触媒の高効率化によりエンジンの燃費が改善されCO2低減効果

本成果は、現行自動車のみならず、ガソリンエンジンを搭載した各種装置に共通に応用できる基本材の提供となっており、国内外を問わず、大気環境保全に関連する製品(エンジン機関)での展開に向けて、波及効果を期待できる。プロジェクトの成果による間接的な波及効果として下記のようなものが期待される。

- ・ガソリンエンジンを使用した未規制(規制予定)特殊自動車等の排ガス浄化触媒としての利用
- ・開発した触媒調製技術の適用による二輪車浄化触媒のセリウム低減化
- ・開発した新規担体の一般燃焼排気浄化としての応用
- ・微粒子製造技術による排気処理、VOC処理用触媒への応用
- ・ナノ粒子の合成技術の燃料電池材、機能性セラミックその他の分野への応用
- ・触媒製造技術の応用による、水素製造触媒、化学品製造触媒への展開

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次機能制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

Ⅲ. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果

当プロジェクトは、「自動車用触媒セリウムの使用量-30%」を目標に、単年度という短い期間ながら多くの研究機関が密に連携し持つ知恵と能力を結集した結果、プロジェクト目標を達成しうる複数の材料技術を提案することができ、日本の科学技術の底力、産官学連携の底力を示すと同時に、東日本大震災を乗り越え、しかも被災地である東北大を中心として将来技術を作り上げたことは、日本の復興再生を象徴するプロジェクトであったとも言える。当プロジェクトでは、セリアのもつポテンシャルを最大限に引き出した新材料の開発、そして現状セリアと同等機能を有する非セリア材料の開発を行った。短期間の開発ながら事業目的である(1)新材料・代替材料の開発、(2)新規材料に最適な大量合成技術の開発、(3)自動車実排ガステストによる耐久性評価、(4)セリア使用量を30%以上削減する技術の確立を実施し、さらに実車評価までの結果を踏まえて目標を実現しうる複数の候補材料を見出すことができ、十分にプロジェクト目標を達成した。また、本プロジェクトでは裾野の広い材料探索に立脚した材料開発が行われた結果、実車試験に至らなかった中にも今後の研究継続により実用触媒材料への可能性が開かれるであろう有望な材料を多数見いだした。以下に、素材から触媒評価までの結果について総括する。

1 高 OSC 材の探索結果

大学を中心とした研究チームが各自の提案する種々の手法でセリア改良材、非セリア材の素材研究を鋭意推進した結果、200 を超える素材を合成することが出来た。すべての素材の OSC 能評価(パルス法など)を実施して、プロジェクトが定めた第一稀元素化学工業製基準セリア(量産材)を超える OSC 能を有する開発素材を約 50 種抽出した。詳細は各論を参照してもらいたい。セリア改良材の傾向として Ca や Mn、Co の添加効果が認められ、非セリア材としては A サイトに Ba を有するペロブスカイト系材料に OSC 能としての高いポテンシャルが認められた。

2 TWC 可能性検討結果

上記の予備評価を通過した約 50 種の素材をベースに触媒粉末を合成し、産総研つくばの 5 連評価装置にて模擬ガスによる定常降温テストを実施し、プロジェクトの定める基準触媒との TWC 特性比較による素材抽出を行った(詳細は開発項目②-5-1 を参照のこと)。テストに供した触媒サンプルは 150 超にも上り、その中から合成プロセス改良セリア、Ce-O-M 相互作用制御材料、Mn・Ca ドープセリア、ナノセリアグラフティング、Ba 系ペロブスカイトなど、10 種の開発素材を使用した触媒を抽出した。

3 模擬排ガスおよび実車排ガス評価結果

実車評価には、上記模擬ガスによる単体評価を通過した触媒を含め 8 サンプルを実車用触媒コンバータとして試作しテストに供した(詳細は開発項目②-5-3 を参照のこと)。基準触媒同等以上の排ガス浄化性能を示した触媒は 3 つあり、それぞれ WC-04、WC-07、WC-08 であった。この結果で特に重要なのが、すべての触媒が-30%セリアでかつ量産同等の熱耐久を施した後の性能結果である、ということである。このことは、即ち、新材料開発で常に関門となる実用課題のうちの高温耐久をクリアする見通しがある、ということを示唆している。したがって、当プロジェクトで開発された素材のうち、上述の 3 素材を使用した触媒は少なくとも高い TWC 特性と高温耐性を併せ持つと言える。

さらに、セリア自身の改良・性能向上を目指した研究成果から、特殊な合成手法を適用することでセリア自身としては標準セリアを上回る性能を発揮する特殊なセリア改良材も見つかっており(WC-01)、本プロジェクトで見出した各種のプロモーターと組み合わせることで、更なる性能向上が期待できる。

一方、本田技術研究所にて模擬ガスによる小型ハニカム触媒の TWC 特性評価(単体評価)を同時に実施しており、時間等の都合により実車評価に供することのできなかった触媒の評価をサポートした(詳細は開発項目③を参照のこと)。その結果、セリアへの Ca・Mn ドープ材やペロブスカイト系材料で特異的な TWC 特性が認められ、今後の可能性を期待できる素材として抽出した。

当プロジェクトの成果としては、実車評価の結果を踏まえて、WC-04、WC-07 および WC-08 が-30%セリア触媒を

達成しうる材料である、と結論付けられる。

以下の表に、各研究開発項目毎の達成度をまとめた。

目標	研究開発成果	達成度
<p>①-1 理論シミュレーションによる材料設計指針 ・新規セリア系/非セリア系材料のシンタリング特性を予測できるマルチスケール・シンタリングシミュレータを開発する。 ・超高速化量子分子動力学法および第一原理計算手法を用いて、セリアや白金の微細構造・電子構造を明らかにする。 第一原理手法を用いて、新材料と白金・アルミナ担体間の相互作用を明らかにする。 ・超高速化量子分子動力学法および第一原理手法を用いて、組成および表面構造と OSC 能の関連性を検討する。 ・研究開発項目②で提案される新規セリア系/非セリア系材料のシンタリング特性をマルチスケール・シンタリングシミュレータで予測し、開発実験にフィードバックする。</p>	<p>(1)新規セリア系/非セリア系材料のシンタリング特性を予測できるマルチスケール・シンタリングシミュレータを開発した。 (2)超高速化量子分子動力学法および第一原理計算手法を用いて、セリアや白金の微細構造・電子構造を明らかにした。 (3)第一原理手法を用いて、新材料と白金・アルミナ担体間の相互作用を明らかにした。 (4)超高速化量子分子動力学法および第一原理手法を用いて、組成および表面構造と OSC 能の関連性を検討した。 (5)研究開発項目②で提案される新規セリア系/非セリア系材料のシンタリング特性をマルチスケール・シンタリングシミュレータで予測し、開発実験にフィードバックした。耐熱性アルミナの触媒のシンタリング耐久に及ぼす効果をいち早く予測していたが、チームワークが良かったこともあり、巧くフィードバックがなされ、開発実験で実証された。</p>	<p>達成</p>
<p>①-2 シンタリングメカニズムの実験的解析 ・300～700℃におけるナノセリア緻密体のシンタリング挙動を観察し、2 種のインヒビターを粒界に導入してその抑制効果を明らかにする。 ・数 nm 厚のナノセリア単層膜におけるシンタリング挙動を観察し、添加元素やコアシェル構造がシンタリング挙動に及ぼす影響を明らかにする。</p>	<p>(1) セリアナノ粒子とその単層膜の作製、ならびに非セリア系材料として Ba-Sr-Co-Fe 系ペロブスカイト型酸化物に着目し、大量合成手法の確立や酸素吸放出能の測定を行なった。 (2)セリアナノ粒子に関しては、紫外レーザー照射法により粒径 2～3 nm 程度のセリアナノ粒子ならびに Sm 添加セリアナノ粒子が得られた。そのセリアナノ粒子コロイドはラングミュア・プロジェクト法によりシリコン基板上に単層累積することができ、シンタリング挙動などを解析するテンプレートとして利用できる。さらに、Ba-Sr-Co-Fe 系ペロブスカイト型酸化物は良好な酸素吸放出能を示し、非セリア系材料の有望候補であることが示唆された。</p>	<p>達成</p>
<p>①-3 実用触媒の観点に基づく設計指針 ・平成23年第2四半期末までに OSC 能と触媒機能の相関性を構築し、第3四半期以降、相関性に基づいた材料設計指針と要件を提示し、当該プロジェクトの方向性を明示する。</p>	<p>(1) 量産触媒開発の経験を活かして本プロジェクトに対し、・CeO₂ 低減による自動車触媒への影響性・基準 CeO₂、基準触媒を設定・実用評価に欠かせない Aging 条件を提示をしたことで実用観点に基づく材料設計指針を示すことが出来た。</p>	<p>達成</p>
<p>①-4 酸素吸放出特性の実験的解析 ・各材料の速い応答および長周期での酸素吸放出の性能をそれぞれ定量化する。添加元素や構造の違い等による性能差をこれら定量化したパラメータにより明らかにする。</p>	<p>(1) パルス法およびパルス・フロー併用法の適用により、セリアおよび代替セリア試料の OSC を迅速に評価できることがわかった。 (2)CO 反応速度は TWC における CO 転化率に影響し、代替セリア試料の OSC 総量は TWC の性能全般(特に CO、炭化水素除去)に影響する傾向がみられた。</p>	<p>達成</p>

<p>②-1 形態制御による高性能化</p> <ul style="list-style-type: none"> ・水系溶媒において粒径をナノレベルで制御できるセリア粒子合成法を開発し、セリア粒子の比表面積増大を図る。 ・その表面を薄膜シリカで被覆したセリア粒子を作製する。 ・高温下に晒し、シリカ被覆による耐シタリング効果を電子顕微鏡観察により評価する。 ・多孔質シリカによる被覆も検討することで、セリアの優れた特性を損なわずにシタリングを抑制できる薄膜シリカ被覆技術を開発する。 ・酸素吸蔵・放出特性の優れた(001)面を露出したセリア系酸化物[Ce_{1-x}Zr_yMzO₂ (M:ドープ金属)]のナノキューブまたは花卉状粒子と貴金属(Pt、Pd、Rh)ナノ粒子をγ-Al₂O₃担体上に高分散した複合粒子をソルボサーマル反応により作製する。 	<p>(1)多孔質シリカに埋め込まれたセリアナノ粒子は 800℃の焼成までは、ナノ構造を維持できるが、それより高温の 1000℃焼成では、十分なシタリング抑制効果を発揮できないことがわかった。また、セリアナノ粒子とアニオン性界面活性剤共存下でシリカ前駆体を加水分解・縮合させるだけで、多孔性シェルを有する中空粒子を簡便に合成できることを明らかにした。</p> <p>(2) ソルボサーマル反応によりセリア複合金属酸化物ナノ粒子を合成し、OSC を Zr₄₊-Co₂₊及び Zr₄₊-Sn₄₊コードーピングで 55 倍及び 22 倍、Co₃O₄ 単独、Co₃O₄/Ce_{0.5}Zr_{0.5}O₂、Co₃O₄/CeO₂ 複合体で 340 倍、356 倍及び 159 倍に向上 (1000℃、20 h 焼成、測定 600℃)できたことから、セリアの使用量 30%削減は可能と思われる。なお、Co₃O₄ の利用ではセリアを完全に代替できるの可能性があるが、γ-Al₂O₃ との反応抑制が必要である。また、均一沈殿反応による花状セリア合成法を開発したが、比表面積が小さかったことから、高比表面積化を図ることが必要である。なお、他の複合金属酸化物の花状セリア合成についても更なる検討が必要である。</p>	<p>達成</p>
<p>②-2 複合化による高性能化</p> <ul style="list-style-type: none"> ・水系溶媒において粒径をナノレベルで制御できるセリア粒子合成法を開発し、セリア粒子の比表面積増大を図る。 ・その表面を薄膜シリカで被覆したセリア粒子を作製する。 ・高温下に晒し、シリカ被覆による耐シタリング効果を電子顕微鏡観察により評価する。 ・多孔質シリカによる被覆も検討することで、セリアの優れた特性を損なわずにシタリングを抑制できる薄膜シリカ被覆技術を開発する。 ・酸素吸蔵・放出特性の優れた(001)面を露出したセリア系酸化物[Ce_{1-x}Zr_yMzO₂ (M:ドープ金属)]のナノキューブまたは花卉状粒子と貴金属(Pt、Pd、Rh)ナノ粒子をγ-Al₂O₃担体上に高分散した複合粒子をソルボサーマル反応により作製する。 ・セリア、もしくはセリア-ジルコニア均一固溶体をアルミナファーバー表面に均一高分散するプロセス技術を開発する。 ・実使用条件下で長期間α-Al₂O₃の生成を防止するとともに 70m²/g 以上の表面積を維持できる耐熱性γ-Al₂O₃を開発する。 	<p>(1) ゼルゲル調製技術をベースとして耐熱性能に優れた各種セリア系触媒を創製した。触媒 D では、基準セリアに比べて 4-7 倍の OSC が認められ、これにより、理論的には 75-86%にのぼるセリア削減の可能性を実証することが出来た。また、Ce XANES スペクトルのフィッティングより、Ce の還元割合を求め、GC パルス法による OSC との間に良い相関があることが分かった。</p> <p>(2) 耐熱アルミナの合成に関して、開発目標としていた 1200℃50h 空气中焼成で 70m²/g を大幅に上回る 112m²/g の比表面積を有する耐熱アルミナの調製に成功した。また、添加物 A を用いたアルミナについて自動車触媒への適用を検討したところ、添加物 A による耐熱性向上と TWC 性能はトレードオフの関係にあることから、最適な添加量を決定した。さらに、添加物のより少ない条件で高い耐熱性を有する担体の調製方法を見出した。</p> <p>(3) 耐熱アルミナの製造法のスケールアップについて検討し、量産化可能な手法や装置を用いて耐熱性を維持しながら大規模製造が可能であることを確認した。耐熱アルミナの自動車触媒への適用性について検討し、添加物 A の過剰の添加は OSC 機能を低下させる場合があり、最適な領域があることが分かった。さらに ZrO₂ を複合化することでエージング後の OSC、SA は従来技術(基準触媒)の約 4 倍、同じくエージング後の CO 吸着量(貴金属表面積)は従来技術(基準触媒)の約 2 倍の数値を</p>	<p>達成</p>

<ul style="list-style-type: none"> ・開発段階での加速評価としては 1200°C、50 時間のエア処理後においてもエックス線的にα-アルミナが検出されず、70m²/g以上の表面積を維持する耐熱性能を目指す。(既存技術では 1200°C、5時間のエア処理で表面積 50m²/g以下、α-アルミナ生成) ・少量の金属添加あるいは高温での触媒焼成による修飾セリアおよびその貴金属担持体を調製して、性能のスクリーニングを行う。 ・上記スクリーニングで絞り込んだ有望な触媒についてさらに最適化を行う。従来法により調製した Pt 担持セリアに比べて酸素吸収および放出速度をそれぞれ 1.5 倍以上に高める。また、第 1 次サンプルを他の研究グループに供給する。 ・第 3 四半期以降、in-situ レーザーラマン分光装置および in-situ 紫外可視分光装置による酸素吸放出の速度解析を行う。このデータに基づきさらに材料を最適化して、従来法により調製した Pt 担持セリアに比べて酸素吸収および放出速度をそれぞれ2倍以上に高める。また、第 3 四半期中には第 2 次サンプルの供給を開始する。 ・酸化鉄など遷移金属酸化物の表面に少量のセリアナノ粒子を高密度にグラフティングした複合粒子を利用して、セリア単独に比べて、Ce 使用量を 1/5 以下に削減するとともに、OSC 能を 5 倍以上大容量化する。本目標を達成するために本研究開発で購入する光電子分光装置を用いて複合粒子の酸化還元機構、界面構造および触媒作用の解析を行う。 	<p>保持できる事が分かった。</p> <p>(4) TWC 性能を評価した結果、セリア 42%削減触媒で基準触媒と同等の性能を有する事および、セリアのみならず貴金属も削減できる可能性が明らかとなった。</p> <p>(5) 金属-セリア相互作用を利用した酸素吸放出速度の向上と、In-situ レーザーラマンにより酸素吸放出速度の向上の実証を目的とした。Pt 担持セリアに比べて酸素吸収および放出速度を2倍以上とする数値目標に対して、Ni 添加により OSC の量を 2.5 倍、速度を 3.5 倍することに成功した。</p> <p>(6) In-situ レーザーラマンによるセリアの酸化還元挙動ダイナミクス測定を開発し、Rh 分離添加による表面での OSC 速度向上を実証した。</p> <p>(7) 約 50 種類の遷移金属酸化物粒子の表面に CeO₂ ナノ粒子をグラフティングした複合粒子について、OSC および酸素放出初速度を調べた結果、Ce 使用量を 1/5 以下にした上で、CeO₂ に比べて 5 倍以上大きい OSC を示す数種の候補物質を見出した。ガソリン自動車を模擬した空燃比振動条件において候補物質の空燃比緩衝能力および触媒性能を実証した。</p>	
<p>②-3 非セリア系材料開発</p> <ul style="list-style-type: none"> ・フェライト(Fe)系材料、鉄シリカ系材料、あるいはそれらのセリアとの複合ナノ粒子材料を試作する。 ・表面有機修飾技術によるサイズ・結晶露出面制御による構造制御技術により最適化を計る。 ・流通式超臨界装置による評価用試料の大量合成プロセスの開発を行う。 ・現有銀アルミナ触媒のサンプル性能評価を行う。1000°C での還元・酸化エージング後の条件で、既存の白金セリア、パラジウムセリア系触媒に比べて酸素過剰条件で2倍の CO 浄化特性を達成する。 ・購入設備の昇温反応装置を用いて、触媒スクリーニングを行い、酸素不足条件でも Pt セリア系と同等の CO 浄化活性を達成する。 	<p>(1) 100 面露出 CeO₂ は基準触媒に比べ活性の向上が図れなかった。超臨界ナノ粒子セリアによる触媒機能は、高温雰囲気下で結晶構造が崩れるためではないかと推定している。</p> <p>(2) 代替材料として開発した鉄系触媒、即ちシリカ・鉄及びジルコニア・鉄は基準触媒に比べ高い OSC 能を有するが、シリカ・鉄は耐熱性に劣るため、ハニカム活性評価では高温域で活性低下が著しいが、耐熱性を考えて採用したジルコニア・鉄はハニカム活性評価試験ではほぼ基準触媒と同等の結果を得ており、代替材料として充分期待できる。</p> <p>(3) ジルコニア・鉄系材料については、超臨界法による粒径制御・形状制御による高活性化、第3成分付与など今後さらなる高活性化の検討を進めたい。またプロセス開発も現在の 10 T/Yの実用化装置を起点に、さらなる大型化と今回開発し、大量試作に取り入れた超臨界乾燥プロセスの実用化も進めたい。</p> <p>(4) セリアの有するシタリング抑制効果が安</p>	<p>達成</p>

<ul style="list-style-type: none"> ・改良型サンプルのサンプル性能評価を行う。酸素濃度の変動する試験モードで Pt セリア系と同等の CO 浄化活性を達成する。 ・浄化システム全体では、NO_x 浄化用のセリア系触媒と併用する。システム全体でのセリア使用量30%削減を達成する。 ・ゲルゾル法を、セリア以外の複合酸化物、たとえば、マンガン酸ランタンストロンチウム $\text{La}_x\text{Sr}_{2-x}\text{MnO}_4$ や、チタン酸ビスマス系複合酸化物、トリア系複合酸化物などに応用し、セリア代替酸化物ナノ粒子の一般的合成法の開発と、高機能化、さらには表面特性制御までを達成目標とする。 ・キャラクタリゼーションとして、高分解能 TEM、NO-CO 反応活性試験、NO、CO 吸着と吸着種変化の in situ 分析、あるいは触媒の表面特性及び耐炭素析出安定性測定手法としての TPR、TPRe、TPO や、種々の X 線分析(XRD、XAFS など)を行い、材料の基本的特性(構造、組成、結晶系、結晶性)のほか、粒径、形態、表面特性などを解明し、かつ、NO-CO 反応活性評価と、反応機構解明を実施する。 	<p>価な材料で代替可能であることを実証した。開発した Ag/La-Al₂O₃ は高い耐シンタリング性能と自己再生機能をもつ非セリア材料である。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・基準セリアの劣化過程を行い、セリアの劣化抑制に向けた基礎的知見を得た。 ・非セリア、セリア低減 OSC 剤の酸素放出挙動解析と構造解析を行い、他グループの新触媒開発の効率化に寄与した。 <p>(5) セリアの代替材料として期待される BaZrO₃:Ce 微粒子の合成に成功し、また大型リアクターを用いることで大量合成を行うことが可能であることを示した。今後、粒子形状・サイズ、ドーブ Ce 量を変化させ最適化することで高活性代替セリア材料の開発が出来るものと期待される。</p>	
<p>②-4 調製技術の開発</p> <ul style="list-style-type: none"> ・金属前駆体種、操作条件(温度、圧力、前駆体濃度等)との関係を把握する。 ・予備検討で重要な因子と推察されたエントレーナの添加量との関係を詳細に解析する。 ・複数金属微粒子の組み合わせについて検討する。 ・調整して生成した触媒については、評価グループにより活性の定量化を行い、分散状態との相互関係を解析する。 ・マイクロ波固相合成を用い、非セリア系材料で助触媒能、酸素吸蔵能を有する新規材料設計と新規材料合成法を確立する。 ・高い触媒活性を發揮させるために、貴金属ナノ粒子を被毒しなく低温で高効率に合成・分散・担持する手法の開発を行う。 ・既存設備の高速データロガーと X 線回折装置による触媒サンプル評価システムを構築し、種々の非線形回帰モデル構築法を比較することで、本プロジェクトに適したモデルを確立する(第 	<p>(1) 超臨界担持法を多孔性シリカ以外の担体として CeO₂ に対して適用し、Rh 担持による排ガス浄化触媒への応用を検討した。その結果、Rh 添加による OSC 能の向上がみられ、TWC 性能に関しては従来触媒と同等の活性を示すことがわかった。今後の課題としては、焼成、還元条件が Rh 分散性や触媒活性に与える影響を検討し、Rh-CeO₂ 間の相互作用を解明する必要があると考える。また、セリア水熱合成については、炭化と水熱合成の2段階で行うことで中空セリアが得られることが判明した。次の課題は、炭化物表面がセリアと親和性の高い状態になる炭化条件の策定である。</p> <p>(2) マイクロ波プロセスを用いて、デラフォサイト型 CuFeO₂ の合成することによって、通常の合成法よりも低温短時間で合成が可能であり、粒子の微細化(表面積の向上)と酸素欠陥の導入が示唆された。</p> <p>また、Pt 及び Pd 貴金属系微粒子のデラフォサイト型 CuFeO₂ へのナノコンポジット化プロセスを開発することにより、OSC 能と CuFeO₂ の熱サイクル特性の向上を達成した。</p> <p>(3) 主成分分析-非線形回帰手法を用いてセリアジルコニア材料の性能向上を検討した結果、</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. Ce-Mn 系酸化物でセリア半減の可能性 2. Ca-Mn 系系酸化物でセリア 100%削減の可 	<p>達成</p>

<p>1 四半期)。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・大気圧マスフィルターによる評価システムを用いて触媒調製パラメータを最適化し、酸素吸蔵能を最大化する(第2 四半期)。 ・大量合成サンプルの調製パラメータを最適化することで、セリア使用量を30%削減する。 	<p>能性を見出し、当初目標のセリア使用量 30%削減へ寄与することができた。本研究で用いた「9 元素のデータ→物性値主成分非線形回帰→組成最適化」というループを繰り返す手法が、有効であることが示された。</p>	
<p>②-5 サンプル性能評価</p> <ul style="list-style-type: none"> ・実車のモード試験により、現状のセリア含有排ガス触媒による排ガス浄化特性を 3 サンプル以上計測評価し、触媒の基礎特性評価に有益なデータを取得する。具体的には、シャシダイナモによる実車のモード走行を用い、触媒の上流と下流での排出ガス成分濃度を時系列的に測定することによって、過渡を含めたさまざまな排出ガス条件での既存触媒に対するメリット、デメリットを明確化、このデータを基に触媒特性の評価としての性能目標を明確にし、粒状触媒や第二スクリーニングでの小型ハニカム触媒等の評価方法について検討提案する。(産総研) ・(第一スクリーニング) 現状のセリア含有排ガス触媒の実車モード試験の結果を加味して、粉末状触媒についてリーン-リッチ条件が交互に周期的に変化する模擬排ガス条件下での平均的排ガス浄化性能評価およびリーン-リッチ条件切り替わり直後の過渡応答性能評価を可能とする5連触媒活性試験装置を準備し、これを用いて試験を実施し、触媒の基礎特性データを取得する。複数の触媒試料の活性を同一条件で同時に評価することにより、組成や処理条件などの絞り込みを迅速に行い、高活性な触媒を短期間に見出す(産総研) ・(第二スクリーニング) 最終的な「実車によるモード走行評価」に近い評価を少量の新触媒にて担うとともに、各種有害物質についての検証も担う。具体的には有望な数種類の触媒を対象として、比較的少量の触媒で製作の可能な小型ハニカム状触媒(実機の 1/30 程度)を製作し、単体エンジンからの排出ガスのリーン/リッチ切り替えに伴う触媒前後での排出ガスの高速微量成分分析を可能とするシステムを構築し、現状のセリア含有排ガス触媒の実車モード試験の結果を加味して、実排出ガスでの触媒性能を把握する。これにより、粒状触媒で得たセリア性能がハニカム触媒での動的反応に与える影響を把握、拡散解析にも資するデータを取得するとともに、個々の炭化水素等の高精度分析によりハニカム触媒での有害物質浄化能に資するデータを取得する。(宮城産技セ) 	<p>(1) 基準触媒の選定および研究項目①で作製された新規触媒の TWC 活性試験による高活性触媒の選出を行った。基準触媒組成は 1wt% Rh/CeO₂ + 2.5wt% Pd/Al₂O₃ (CeO₂:Al₂O₃=1:2) と決定した。高活性触媒の選出では、Aged サンプルの NO_x 転化率が基準触媒より高く、エージングによる活性低下が少ない 8 サンプルを実機試験に使用する触媒として選んだ。また、基準触媒相当と考えられる 7 サンプルを今後の研究で期待できる触媒として選定した。(2) 基準触媒選定のための OSC 測定を 46 サンプル行うとともに、基準触媒選定+高活性触媒選出+ハニカムサンプル活性チェックによる TWC 活性試験を総数 193 サンプルについて行った。</p> <p>(3) エンジン制御負荷変動装置、ソフトイオン化質量分析装置(IMR-MS)、濃縮装置付きガスクロマトグラフ質量分析装置(GC-MS)、触媒ホルダ管、排ガス捕集配管、ダイアグテスター等で構成される「実排ガスによる小型ハニカム触媒性能評価システム」を開発した。</p> <p>(4) 開発触媒の評価実験を繰り返し実施し、転化率のばらつきが小さく再現性のある結果を得ることが出来た。また、実排出ガスに含まれる個々の炭化水素(約 50 種)に対する開発触媒の有害物質浄化能に関する高精度分析結果を得た。</p> <p>(5) 拡散解析に資する実測データを東北大学宮本研究室に提供し、シミュレーション解析に貢献することが出来た。</p> <p>(6) JC08 モードにより既存触媒の浄化率を時系列的に計測し、触媒の特性を把握した。(2) 本プロジェクトで新開発し、セリウムを 30%低減した触媒の JC08 モード試験を実施し、WC04、WC07、WC08 が基準となる触媒同等の浄化性能を示すことを確認した。(3)新開発触媒の時系列的な性能評価により、今回開発された触媒の性能、今後の課題について示した。</p>	<p>達成</p>

<p>・(実車対応試験)プロジェクトで試作された特に有望な数種類のハニカム状触媒(実機の 1/4 から 1/1)を対象として、実車を用いたモード試験により実使用条件下での評価を行う。具体的には運転条件と時系列的に測定された浄化率から各触媒のメリットとなる特性に注目し、その評価を行う。(産総研)</p>		
<p>②-6 開発材料の量産化検討</p> <p>・有望シーズの概算製造コストを計算し、採算ベースにのるかどうかを判断する。</p> <p>・採算ベースにのらない場合について、より低コストで大量量産できる技術を検討する。</p>	<p>(1) 東北大学の有望シーズ材料 2 種について、採算ベースも考慮し大規模量産が可能であることを確認できたことから、当初目標はクリアできた。産総研、熊本大学の提案材料 2 種についても、大規模量産に対して基本となる工程条件を設定でき、解決すべき課題を明らかにすることができた。</p>	<p>達成</p>
<p>③ 実用触媒の観点に基づく評価指針と実用化の検討</p> <p>・開発材の評価を通して、プロジェクトの目標達成レベルと実用化に向けた課題を明確化する。</p>	<p>単体および実車評価結果から、WC-08 が-30%CeO₂ 目標をクリアしうることを確認できた。今後、さらなる触媒としての低温活性や SV タフネスの向上、熱以外の耐久劣化課題を確認・克服することで十分に-30%CeO₂ 触媒を実現することは可能、と言える。</p> <p>(2) WC-08 以外にも、WC-04 や WC-07 も実車での高い触媒活性を確認できており、今後の改良に期待が持てる。さらに、今回実車評価まで至っていないが、ペロブスカイト材料でも十分に高い NO_x 浄化活性を単体評価で確認しており、実車での触媒活性にも期待が持てる。</p> <p>(3) 短期間の開発ながら実車評価まで実施し、-30%CeO₂ 触媒を実現しうる複数の候補材料を見出すことができ、十分にプロジェクト目標を達成できた、と言える。</p>	<p>達成</p>

2. 研究開発項目毎の成果

各項目毎の成果を下に詳細に述べる。

研究開発項目①-1 : 理論シミュレーションによる材料設計指針
(東北大学宮本研究室・久保研究室)

1 緒言

セリアは自動車触媒において自らを酸化還元させることで、酸素の吸蔵放出を安定的に行う役割を担っている。また、貴金属自体を安定化させて貴金属シンタリングを防ぐ。そのためセリアの高性能化のためには、セリアが本来持つ機能を分子・量子レベルから解明することが必要である。そこで、本項目では、理論シミュレーションを用いた研究開発支援、セリア高機能化の原理原則の解明に不可欠なセリアあるいは代替酸化物粒子のキャラクタリゼーションを実施する。また、開発した材料のキャラクタリゼーション、シンタリング特性、酸素吸放出特性を迅速に実施できる体制を整えることで、開発研究を加速化し、合わせて、理論シミュレーションと開発研究の橋渡しを行う必要がある。上記の目標を達成するには、新しい発想に基づく触媒、助触媒の開発が望まれている。しかしながら、それらを有効に開発するためには、従来の試行錯誤的な実験手法のみでは困難が予想される。つまり、ブレークスルーを実現するためには新規な研究手法の確立が必要不可欠である。本研究では、実験融

合マルチスケール・マルチフィジクス計算化学という、測定技術とコンピュータ化学を融合させた、斬新な研究手法を開発することで、革新的な自動車用触媒開発研究をトータルに支援できる新規アプローチ手法の開発と応用展開を行う。

具体的には、下記の課題を実施した。

1. 超高速化量子分子動力学法および第一原理手法を用いて、新材料と白金・アルミナ担体間の相互作用を定量化し、さらに組成および表面構造と OSC 能の関連性を、原子・電子レベルから明らかにする。
2. マルチスケール・シタリングシミュレータを開発して、研究開発項目②で提案される新規セリア系/非セリア系材料のシタリング特性の予測を行う。
3. 以上のシミュレーション結果を実験にフィードバックし、開発を加速する。

研究開発では、下記の目標を達成する。

1. 新規セリア系/非セリア系材料のシタリング特性を予測できるマルチスケール・シタリングシミュレータを開発する。
2. 超高速化量子分子動力学法および第一原理計算手法を用いて、セリアや白金の微細構造・電子構造を明らかにする。
3. 第一原理手法を用いて、新材料と白金・アルミナ担体間の相互作用を明らかにする。
4. 超高速化量子分子動力学法および第一原理手法を用いて、組成および表面構造と OSC 能の関連性を検討する。
5. 研究開発項目②で提案される新規セリア系/非セリア系材料のシタリング特性をマルチスケール・シタリングシミュレータで予測し、開発実験にフィードバックする。

2 方法

2. 1. 第一原理計算

第一原理計算には、DMol3 プログラムパッケージを使用し、密度汎関数理論(DFT)を採用した。汎関数としては GGA-PBE を、基底は DNP を用いた。また内核電子の記述のために、Effective Core Potential (ECP)を採用した。4×4×1 の k 点サンプリングを用い、オービタル・カットオフは 5.8Å とした。また、遠距離の電子ポテンシャルは Octupole レベルの多極子展開を用いて、安定的に収束させるために 0.1 Ha の Smearing-Factor を利用した。また、本研究では界面エネルギーは図 1-1-1 に示したようにセリア表面のスラブモデルと金属スラブ表面との距離を変化させていき、その時のエネルギー変化より求めた。界面エネルギーは図 1-1-1 に示すように、2 つの表面間を十分に離れた場合と、最も強く相互作用する場合とのエネルギー差より評価した。

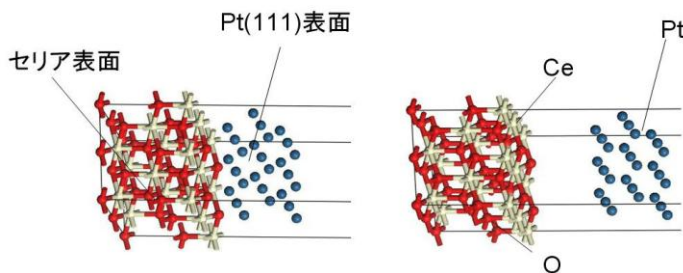


図 1-1-1 界面エネルギーを算出するためのセリア-金属間距離を変化させたモデル図

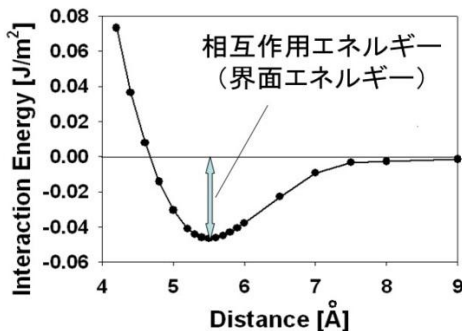


図 1-1-2 2つのモデル表面の距離に関する energy surface

2. 2. 実験融合マルチスケール・マルチフィジクス計算化学

下記に示す実験融合マルチスケール・マルチフィジクス計算化学手法を本研究目的達成のために

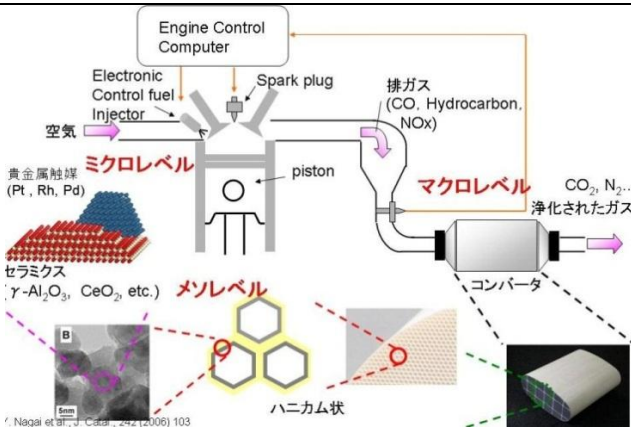


図 1-1-3 実験融合マルチスケール・マルチフィジックス計算化学手法

ミクロレベル、メソレベル、マクロレベルの触媒反応、拡散、イオン電導、熱伝導など多様な物理現象に対応したソフトウェア群から構成されている。

多くの改良を加えた。

3 結果と考察

3. 1 第一原理計算によるセリア-貴金属界面計算

3.1.1 セリア-Pt および ジルコニア-Pt 間相互作用

第一原理計算によって求めた セリア-Pt およびジルコニア-Pt 間の相互作用 (energy surface) を図 1-1-4 に示す。図 1-1-4a はセリア-Pt 間の energy surface であり、図 1-1-4b はジルコニア-Pt 間の energy surface である。

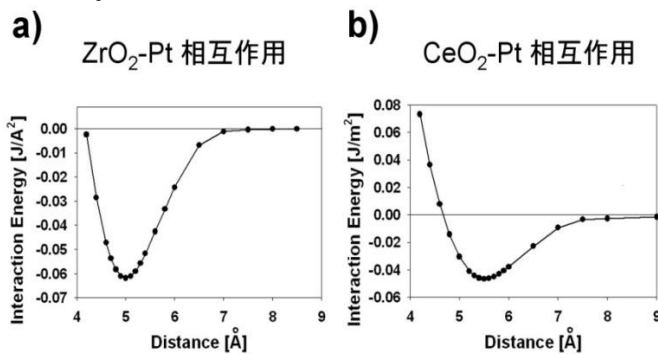


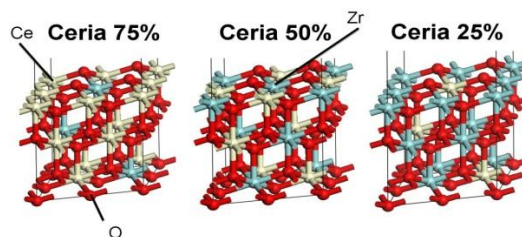
図 1-1-4 a) セリア-Pt および b) ジルコニア-Pt 間の相互作用 (energy surface)

計算より、セリア-Pt 間の界面エネルギーは 0.47 kJ/m² であり、最も強く相互作用する距離は 5.5 Å となった。一方、ジルコニア-Pt 間の界面エネルギーは 0.62 kJ/m² であり、最も強く相互作用する距離は 5.0 Å である。セリアと比較してジルコニア-白金間の方が、界面エネルギーが高く、さらに 2 つの表面間距離に近い。

3.1.2 CZ 材料の界面エネルギー

次に CZ 材料の界面エネルギーを求める。計算手法および計算条件はセリアおよびジルコニアで用いたものと同様である。また、セリウム原子がジルコニウム原子に置換することによって界面エネルギーにどのような変化が現れるかを調べるために、図 1-1-5 に示すようなモデルを作成した。図 1-1-5 に示したモデルでは、置換するジルコニウム原子が材料の中で均一になるように配置した。CZ 材料と Pt 表面との相互作用計算の結果を図 1-1-6 にまとめる。図 1-1-6 では、セリア-Pt 間の結果も合わせて示してある。Ceria75%モデルでは Ceria100%モデルと比較して界面エネルギーに大きな影響が見られなかった。

図 1-1-5 CZ 材料モデル



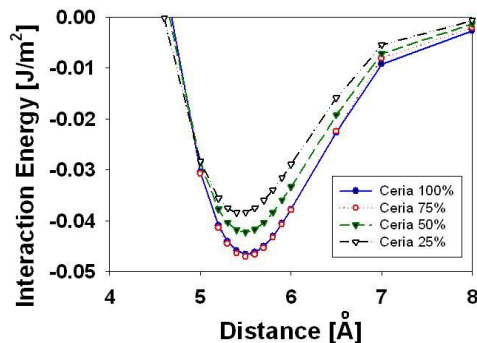


図 1-1-6 CZ 材料と Pt 間の相互作用エネルギー
(界面エネルギー)

3. 1. 3 構造緩和の影響

これまでの計算では、Pt 金属表面の構造緩和の影響は考慮せずに界面エネルギーについて議論を行ってきた。しかしながら、金属表面は CZ 材料表面の影響を強く受け、その構造には大きな変化が現れると考えられる。しかしながら、半導体と金属表面がどのような構造を持つかについては実験および計算共に不明な点が多い。そこで、金属表面の構造緩和計算を行った。計算では、前節までで求めた 2 つの表面間の再安定距離を用いたモデルから構造緩和計算を行った(図 1-1-7)。ここで、図 1-1-7 にあるように、半導体材料側は固定し、さらに、金属の 3 層目も固定し、金属 1、2 層目に関してのみ構造最適化計算を行った。

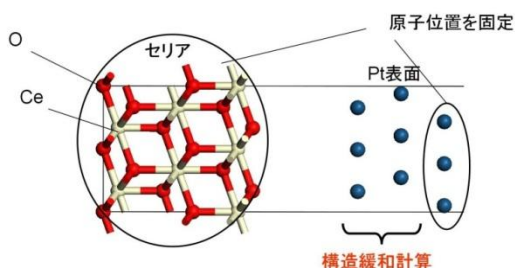


図 1-1-7 構造緩和に用いたモデルの説明図

結果を図 1-1-8 に示す。図から分かるように、金属原子は半導体材料の下地の効果を受け、大きく構造が変化することが判明した。また、金属表面がこのような大きな構造緩和をすることにより、界面エネルギーが大きく上昇することが分かった。このことから界面エネルギーの算出には金属側の構造緩和の影響を考慮することが必須であることが分かった。

図 1-1-8
金属の構造緩和計算によって得られた構造

1 層目、2 層目の Pt 原子の位置が大きく移動していることが分かる。

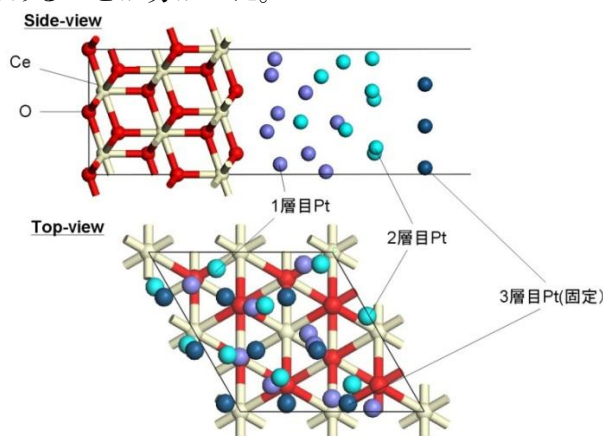


表 1-1-1 に構造緩和の影響を考慮した CZ 材料と Pt 表面間の界面エネルギーの計算結果をまとめる。表では、図 1-1-5 にみられるように Ce 原子の代わりに Zr 原子で置換したモデルの界面エネルギーを示してある。金属側の構造緩和を許した場合には、界面エネルギーは表面に Zr 原子が増える程増加する傾向があることが分かった。

表 1-1-1 CZ 材料と Pt 金属表面間の界面エネルギー

	Ceria 100%	Ceria 75%	Ceria 50%	Ceria 25%	Ceria 0% (Zirconia)
Interface Energy [J/m2]	21.1	24.2	28.1	32.2	36.0

3.1.4 CeO₂-Rh 界面

前節までは主に Pt とセリア界面について検討を行ってきたが、基準セリアとの比較・検討を行うために、本節では Rh とセリア界面についての計算を行った。計算方法および計算条件は Pt 表面の場合と同様であり、Pt 表面のケースと同様の条件で Rh 原子の構造緩和を許し、界面エネルギーを計算した。Rh 金属表面の場合も Pt 金属表面と同様に大きく構造が緩和することを確認した(図 1-1-9)。また、Rh 金属表面の場合も Pt 表面と同様に、構造緩和を許さない場合と比較して、構造緩和を考慮した方が大きく界面エネルギーが上昇することが分かった。

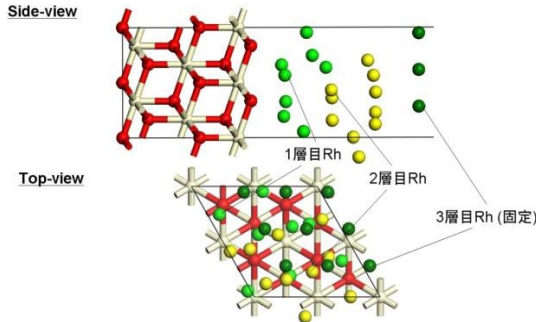


図 1-1-9 Rh 金属の構造緩和計算によって得られた構造

Pt 金属表面と同様に、1 層目、2 層目の Rh 原子の位置が大きく移動していることが分かる。

また、表 1-1-2 に CZ 材料と Rh 金属表面間の界面エネルギーをまとめる。

表 1-1-2 CZ 材料と Rh 金属表面間の界面エネルギー

	Ceria 100%	Ceria 75%	Ceria 50%	Ceria 25%	Ceria 0% (Zirconia)
Interface Energy [J/m ²]	15.6	17.8	20.6	23.5	25.8

Rh 金属表面と CZ 材料についても、Pt 金属表面と同様に、表面に Zr 原子が増えるほど界面エネルギーが上昇する傾向がある。ただし、界面エネルギーの絶対値に関しては、Pt 金属表面の方が Rh 表面と比べて大きい。

3.1.5 ドーパントが界面エネルギーに与える影響

次に、セリア(ジルコニア)上の Ce(Zr)原子を図 1-1-10 のようにドーパント(Ti, Nb, Y)で置換した場合の影響を調べた。このとき、金属原子の位置は前節で求めた構造緩和計算によって得られた構造を用いた。

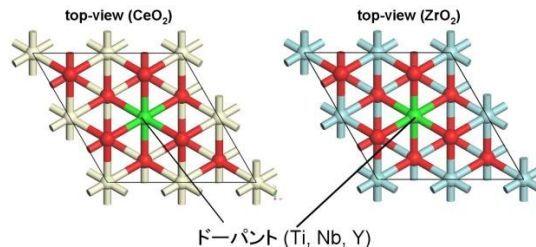


図 1-1-10 ドーパントが導入されたセリアとジルコニア表面のモデル

また、表 1-1-3 にはドーパント(Ti, Nb, Y)を導入した場合のセリアと Pt 金属表面の界面エネルギーを、表 1.1.4 にはジルコニアと Pt 金属表面の界面エネルギーをまとめる。

表 1-1-3 ドープされたセリア材料と Pt 金属表面間の界面エネルギー

	Ceria	Ceria + Ti	Ceria + Nb	Ceria + Y
Interface Energy [J/m ²]	21.075	21.206	21.161	21.112

表 1-1-4 ドープされたジルコニア材料と Pt 金属表面間の界面エネルギー

	Zirconia	Zirconia + Ti	Zirconia + Nb	Zirconia + Y
Interface Energy [J/m ²]	36.006	36.116	36.040	35.968

セリアの場合には、全てのドーパント種(Ti, Nb, Y)で界面エネルギーの増加が見られた。一方、ジルコニアの場合には、Y では界面エネルギーが低下するものの、Ti, Nb の場合には界面エネルギーは増加する。また、ドーパント種の中では Ti ドーピングが最も高い界面エネルギーの上昇を与える。よって、シンタリング耐性向上には Ti ドーピングが有効であることが示唆された。

3. 2. 実験融合マルチスケール・マルチフィジックス計算

各課題についての具体的な成果を述べる。

3.2.1 原子・電子レベル解析の結果

超高速化量子分子動力学法および第一原理手法を用いて新材料と白金・アルミナ担体の相互作用の定量化し、さらに組成および表面構造と OSC 能の関連性を、原子・電子レベルから明らかにした。

既存の第一原理分子動力学法に比べて 1 0 0 0 万倍の高速化を実現した超高速化量子分子動力学 (UA-QCMD) 法により本プロジェクトでの新材料に含まれる殆ど全ての元素についての定量計算を実現した。また、本プロジェクトでは、Pt の他に、Pd, Rh を貴金属として用いているが、それらと新素材、担体との相互作用の定量化も実現した。さらに、その成果を種々の新素材の OSC 能評価に応用し、組成、表面構造と OSC 能の関連性を原子・電子レベルから明らかにした。

図 1-1-11 には、超高速の量子分子動力学計算を可能とする計算スキームを、図 1-1-12 には、1 0 0 0 万倍の高速化にも関わらず、実用的に重要な多くの系について、計算精度が、極めて高いことが示されている。具体的には、密度汎関数法による第一原理計算は、長い計算時間は要するが、多くの系について比較的正確に計算できる理論化学手法と言われているが、図 1-1-12 に示すように、本手法による結合エネルギーの計算値 (Ecolors) は、密度汎関数法による計算値 (EDFT) とよく一致している。同時に、標準となる化合物については、実験的に結合エネルギー (Etherm) も求められ、熱力学データとしてデータベース化されている。一般的に、理論的手法の中では精密といわれる密度汎関数法による結合エネルギー (EDFT) も実験値に比べると平均して数%の誤差があると言われているが、図 1-1-12 の結果は、そのことと合致している。Ecolors は Etherm とよく一致しており、十分な精度をもつことが分かる。さらに、ドーピング元素などとして注目されている Nd, Pr などの希土類元素については、密度汎関数計算では収束に到らず、計算そのものが実行出来ないケースもあったが、本手法では、高速計算が可能というだけでなく、図 1-1-12 に示すように、熱力学データ (Etherm) と比べて、精度の高い計算が行えるようになった。

電子状態 Tight-binding量子化学計算(パラメータ:DFTにより非経験的に決定)

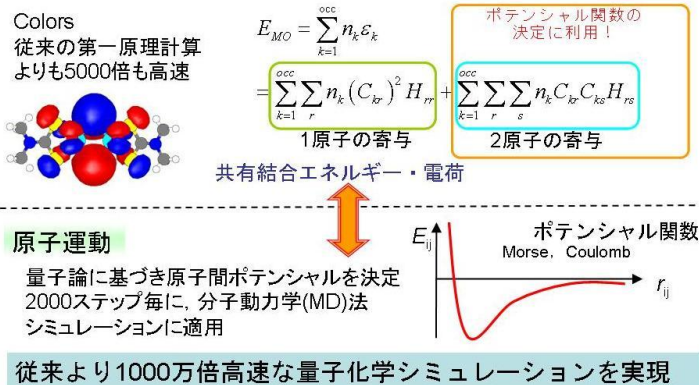
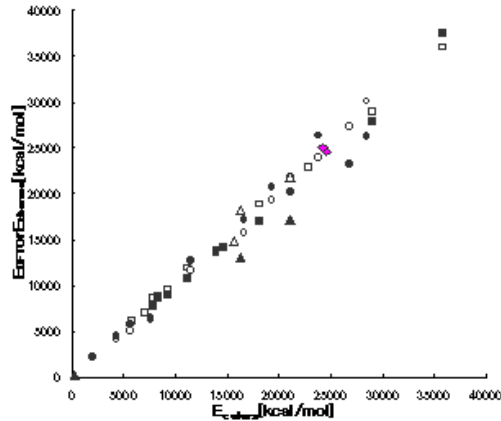


図 1-1-11 超高速化量子分子動力学 (UA-QCMD) の計算スキーム

量子化学部分で、第一原理計算に比べて約 5 0 0 0 倍の高速化を実現するとともに、原子運動を計算する分子動力学計算部分での工夫により約 2 0 0 0 倍の高速化を実現、全体では、1 0 0 0 万倍の高速化が実現される。

図 1-1-12
超高速量子分子動力学法による結合エネルギー計算値 (Ecolors) と密度汎関数法による計算値 (EDFT) 及び熱力学データ (Ethem) との比較



貴金属 (Pt, Pd, Rh など)、金属酸化物 (Al₂O₃, ZrO₂, CeO₂, SiO₂, MgO, La₂O₃, Mn₂O₃, Fe₂O₃, Cr₂O₃, Nd₂O₃, Pr₂O₃ など)、ドーピング元素についての高速、大規模計算が高精度で実現できるようになると、担持貴金属上での触媒反応、セリア系あるいは非セリア系での表面反応と酸化物イオン拡散など本プロジェクトで重要となる多くのプロセス、材料設計への貢献が広がる。そのうちの幾つかの例を図 1-1-13, 図 1-1-14, 図 1-1-15 に示す。

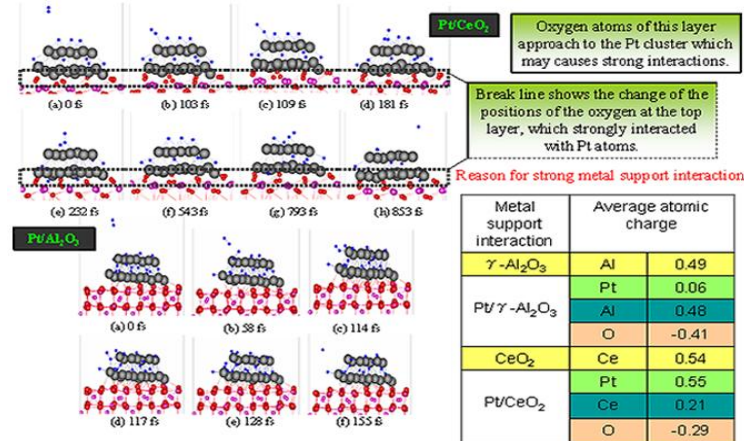


図 1-1-13 Pt/Al₂O₃、Pt/CeO₂ 触媒上での H₂ 分子の反応ダイナミクス

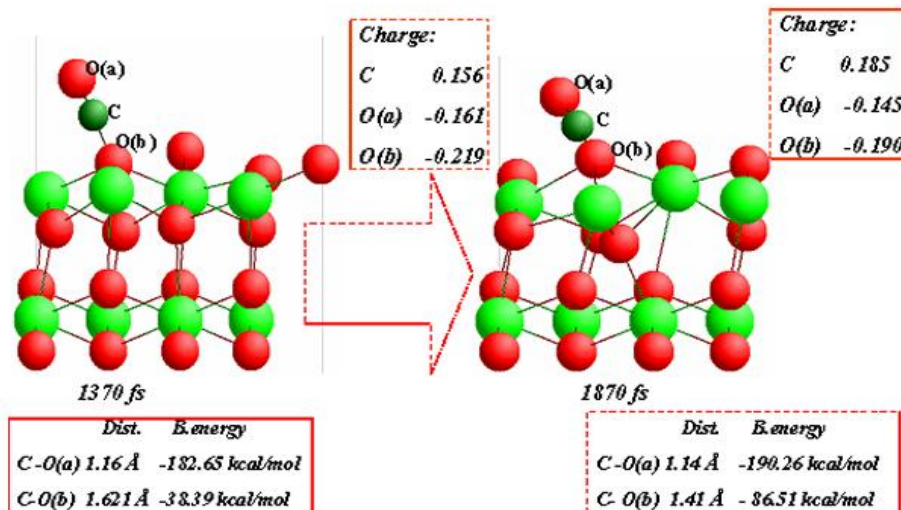


図 1-1-14 CeO₂ の CO 分子による還元反応ダイナミクス

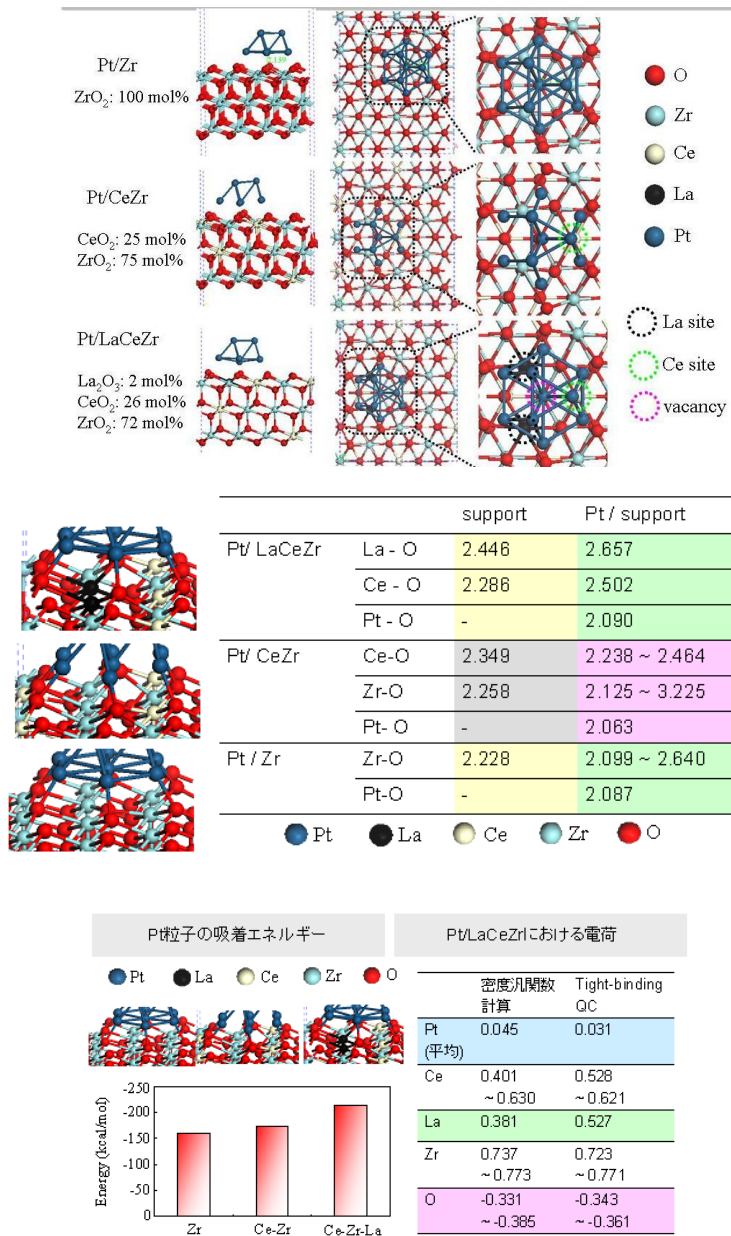


図 1-1-15 Pt/ZrO₂, Pt/CeO₂-ZrO₂, Pt/La-dopedCeO₂-ZrO₂ 触媒の構造と電子状態、結合状態の計算結果

3. 2. 2 メソスケール解析によるシンタリング挙動のシミュレーション

マルチスケール・シンタリングシミュレータを開発して、新規セリア系/非セリア系材料等のシンタリング特性の予測を行った。

超高速化量子分子動力学 (UA-QCMD) 法は、マイクロレベルでの反応ダイナミクス、OSC 機構等を解析する上で有用なだけでなく、メソレベルでの貴金属のシンタリング挙動、あるいは助触媒、担体そのもののシンタリングによる劣化挙動の解析にも有用なパラメータを与える。その一例として、Pt/Al₂O₃, Pt/ZrO₂, Pt/CeZrO₄, Pt/CeO₂ についての結果を、図 1-1-16 に示す。メソレベルの Pt 粒子のシンタリング活性化エネルギーは、量子論により計算される Pt₄ の担体 (助触媒) への吸着エネルギーとよい相関性があることがわかる。この結果は、Pt クラスターについての結果であるが、同様な結果が Rh クラスター、Pd クラスターについても確認され、Colors を使用すれば、量子論の結果をもとに、メソレベルの貴金属シンタリング特性の予測が出来ることを示している。

同様に、図 1-1-17 は、担体 (あるいは助触媒) 自体のシンタリングの活性化エネルギーが、Colors によって計算される担体 (あるいは助触媒) における金属-酸素結合エネルギーにより予測できることを示している。金属-酸素結合エネルギーが小さい金属酸化物は容易にシンタリングが起り、金属-酸素結合エネルギーの大きな金属酸化物はシンタリングをし難いが、それについての定量

的な相関を与えている。

図 1-1-16

大規模量子化学計算 (Colors) による Pt4 クラスタ—担体 (あるいは助触媒) 間の吸着エネルギーとメソレベル Pt シンタリング活性化エネルギーの相関

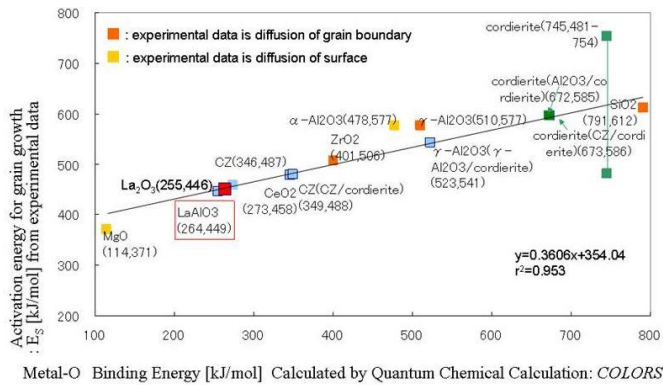
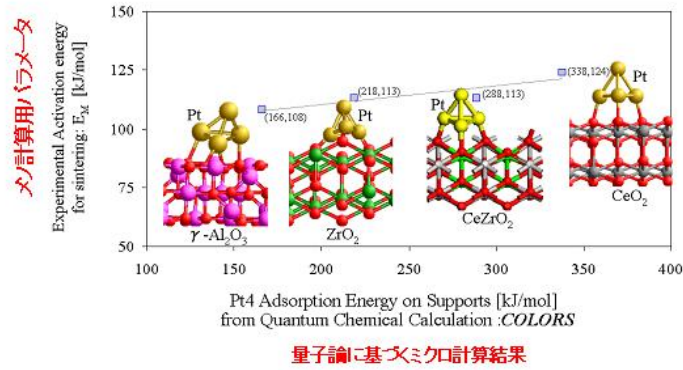


図 1-1-17

大規模量子化学計算 (Colors) による担体 (あるいは助触媒) における金属—酸素結合エネルギーとメソレベル担体 (あるいは助触媒) シンタリング活性化エネルギーの相関

本プロジェクトで取り上げられる触媒、助触媒、担体についての、メソレベルのシンタリングパラメータが超高速化量子分子動力学法などマイクロの情報から予測できるようになったので、次の目標は、プロジェクトで取り上げた多くの複合触媒の構造を的確にモデル化することである。

図 1-1-18 には、担体とセリアのモデルの例を示す。これら以外にも非セリア系も含めて、多様な粒子形状、粒径分布、細孔分布のモデルを作成した。

図 1-1-19 は、アルミナ担体とナノセリアの複合系のモデルである。調製条件により、多様な混合状態、粒径分布、細孔分布の複合材料モデルが構築され、それらのシンタリング挙動も種々の条件で計算した。セリア自体はアルミナに比べ、シンタリングし易いが、複合状態により、シンタリング挙動は大きく異なることも示された。

図 1-1-20 は、それらにさらに貴金属も担持した実触媒のメソモデルである。アルミナとセリアの複合状態、それぞれの担体、助触媒への貴金属 (Rh, Pd) の担持状態、担持量が全体の触媒のシンタリング挙動は勿論、OSC 機能、触媒反応機能、吸着挙動、拡散挙動に大きく影響することが明らかとなった。

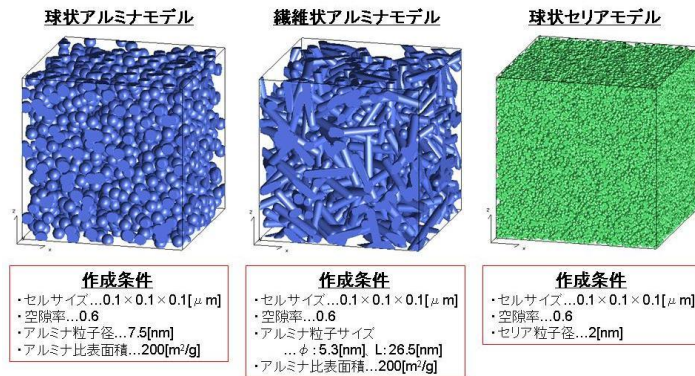


図 1-1-18 球状アルミナ、繊維状アルミナ、球状セリアモデル

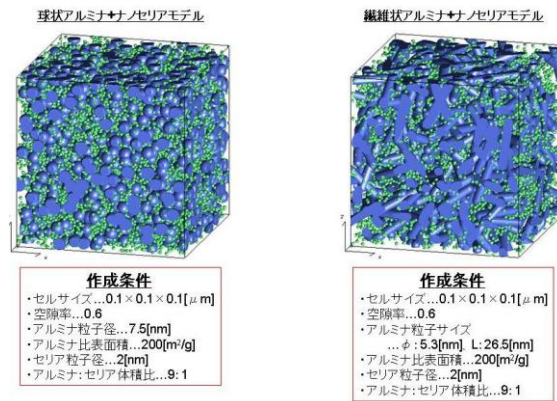


図 1-1-19 球状アルミナ+ナノセリア、繊維状アルミナ+ナノセリア複合系

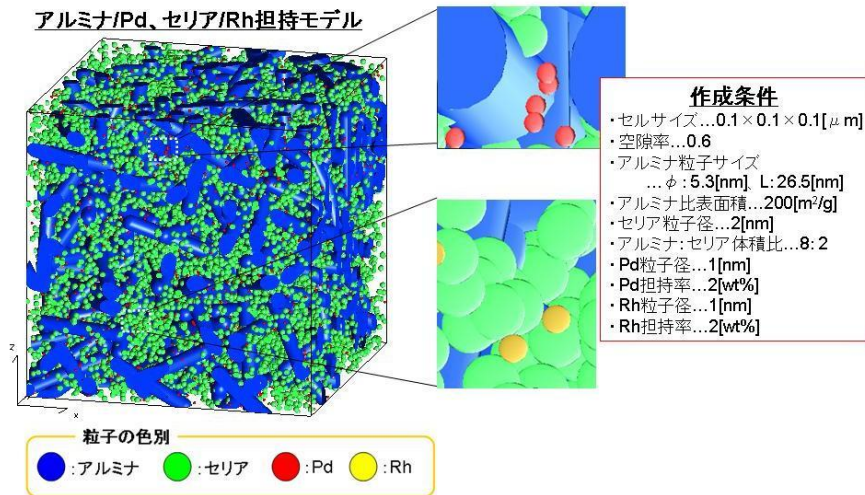


図 1-1-20 Pd/Al₂₀₃-Rh/CeO₂ 複合触媒モデル

3.2.3 マクロシミュレーションによる触媒反応器挙動解析

図 1-1-3 に示すように、前節で述べた複合触媒は、コーゼライトハニカムにウオッシュコートされ、ハニカム触媒となり、コンバータとして利用される。本プロジェクトでも、エンジンダイナモ評価（宮城県）、シャシダイナモ評価（産総研）などエンジンや実際の車を利用する評価方法から、小型ハニカムによる模擬ガス評価（本田技術研究所）、粉末触媒レベルでの模擬ガス評価（産総研）、パルス法 OSC 評価（東北大学）など多くの評価手法を用いて、開発触媒の評価を行った。それらの結果には、3.2.1 で述べたミクロレベルの特性、3.2.2 で述べたメソレベルの特性が影響するが、同時に反応評価手法の違いも影響する。そのため、本プロジェクトでは、上記の評価手法で用いる反応器を全て、シミュレーションするマクロシミュレータを開発した。図 1-1-21 に示したように、貴金属、担体、助触媒上の種々の吸着、反応を考慮するとともに、非定常、非等温条件にも対応できる。同時、マルチスケールシミュレータの中での反応器シミュレータであるので、図 1-1-22 に示すように、反応器の中のそれぞれの場所での触媒のメソモデルがリンクしているので、反応器の全ての位置、時間において、メソ構造がそれぞれの挙動にどのように影響するかを可視化することも出来る。実験研究者との効果的な連携においては、このようなマルチスケール・マルチフィジックスシミュレータは極めて有用であることも明らかとなった。

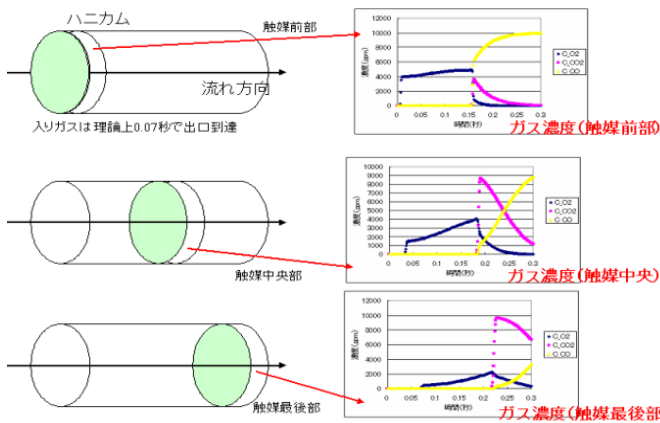
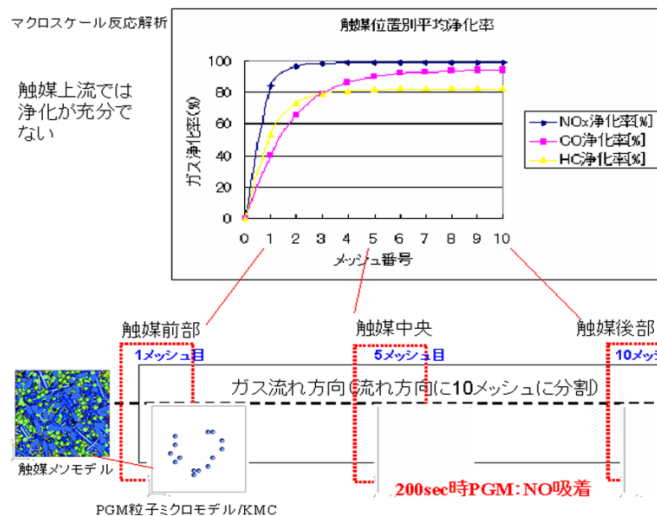


図 1-1-21
ハニカム触媒反応器シミュレータ

貴金属、担体、助触媒上の種々の吸着、反応を考慮したシミュレータ。定常、非定常、等温、非等温など種々の条件でのシミュレーションが可能。

図 1-1-22
メソスケール構造モデルを融合したハニカム触媒反応器シミュレータ

反応器のそれぞれの場所での浄化率、吸着量等をダイナミックに計算できるだけでなく、それぞれの場所での触媒メソモデルを表示し、そこでの反応ガスの吸着量等も表示できる。



4. 結言

目標の達成度の観点で成果を纏めると、下記のように、課題の全てについて目標を達成した。

- 1) 新規セリア系/非セリア系材料のシンタリング特性を予測できるマルチスケール・シンタリングシミュレータを開発した。
- 2) 超高速化量子分子動力学法および第一原理計算手法を用いて、セリアや白金の微細構造・電子構造を明らかにした。
- 3) 第一原理手法を用いて、新材料と白金・アルミナ担体間の相互作用を明らかにした。
- 4) 超高速化量子分子動力学法および第一原理手法を用いて、組成および表面構造と OSC 能の関連性を検討した。
- 5) 研究開発項目②で提案される新規セリア系/非セリア系材料のシンタリング特性をマルチスケール・シンタリングシミュレータで予測し、開発実験にフィードバックした。耐熱性アルミナの触媒のシンタリング耐久に及ぼす効果をいち早く予測していたが、チームワークが良かったこともあり、巧くフィードバックがなされ、開発実験で実証された。

研究開発項目①-2 : シンタリングメカニズムの実験的解析

(東北大学・高村研究室)

1 緒言

本研究では、セリアのシンタリング挙動を解析するテンプレートとしてセリアナノ粒子とその単層膜の作製を行なった。セリアナノ粒子の合成方法には種々の湿式プロセスが提案されており、均一沈殿法に分類されるヘキサメチレンテトラミン (HMTA)を用いると簡便に数 nm のセリアナノ粒子が得られる。しかし、沈殿が生成する pH は陽イオンの種類や濃度によって異なるため、セリア固溶体の様に多成分陽イオンを沈殿させる場合はその組成比が不均一になる可能性がある。さらに、HMTA は変異原性を示すため、日本の化学物質排出把握管理法 (PRTR 法) や欧州連合が環境規制を目的とした

RoSH 指令により使用に規制がある。そこで、本研究では紫外レーザー照射法によりセリアナノ粒子ならびに Sm を固溶したセリアナノ粒子を得る。さらに、セリアナノ粒子コロイドを作製しラングミュア・プロジェクト法による単層膜累積を試みる。

また、非セリア系材料としては鉄含有ペロブスカイト型酸化物に着目した。この酸化物系では酸素 6 配位を取るサイトの遷移金属の Redox により大きな酸素不定性が得られ、酸素 12 配位のアルカリ土類金属や希土類金属の選択によっては酸化物イオンが高い拡散係数を示す。本研究では、Ba-Sr-Co-Fe 系ペロブスカイト型酸化物に着目し、大量合成手法の確立や酸素吸放出能の測定を行なった。

2 実験

セリウム硝酸塩 80 mM、分散剤であるオレイン酸が 40 mM のメタノール溶液 100 ml に、KrF エキシマレーザーが 10 W、50 Hz で 30 分間直接照射され、セリアナノ粒子が得られた。レーザー照射後の溶液は遠心分離により溶液部と沈殿部に分離され、この沈殿部にヘキサンを 100 ml 添加し、5 分間の超音波洗浄によりセリアナノ粒子を溶媒中にコロイド状に分散させた。Sm 添加セリアの作製にはサマリウム硝酸塩を用いた。このコロイドを用いて、ラングミュア・プロジェクト法による単層膜の作製を試みた。下層液には蒸留水、基板には単結晶 Si が用いられた。表面圧は白金プレートを表面圧計として用い、Wilhelmy 法から算出された。Si 上に累積されたセリアナノ粒子にはオレイン酸が付着しているため、その除去のためにオゾン酸化を用いた。

Ba-Sr-Co-Fe 系ペロブスカイト型酸化物 ($\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{203}$; BSCF) は固相反応法により作製された。組成比に秤量された BaCO_3 、 SrCO_3 、 CoO 、 Fe_2O_3 はボールミルにより 24 時間混合された。乾燥後、ハンドプレスによりペレット状に成型され、静水圧成型装置により 250 MPa の圧力で 1 分間の加圧成型が行われた。その後、大気中、1150°C で 5 時間のか焼、1200°C で 10 時間の焼結が行われた。酸素吸放出能の測定には熱重量分析装置が用いられ、流通ガスを空気→Ar-5% H_2 →空気と交互に切り換えた際の重量変化を測定した。

3 結果と考察

作製されたセリアナノ粒子の結晶構造及び粒径を評価するために X 線回折を行った。セリアナノ粒子では、ナノ粒子に特徴的な広幅化した回折パターンを得た。半価幅から粒径を算出すると、紫外レーザー照射直後は 2 nm、オゾン酸化後は 3 nm、400°C の熱処理後は 12 nm であることが分かった。Sm 添加試料も同様に作製され、粒径は作製直後で 2 nm、オゾンアッシング後で 2 nm、400°C の熱処理後で 13 nm と計算された。この結果より、400°C の熱処理では粒成長が起こるが、オレイン酸除去を目的とするオゾン酸化では粒成長が起こらない。図 1-2-1 には、動的光散乱法によるセリアナノ粒子コロイドの粒径のオレイン酸添加量依存性を示す。添加量が 25 mM 以上でシングルナノのセリアナノ粒子コロイドとなることが分かった。

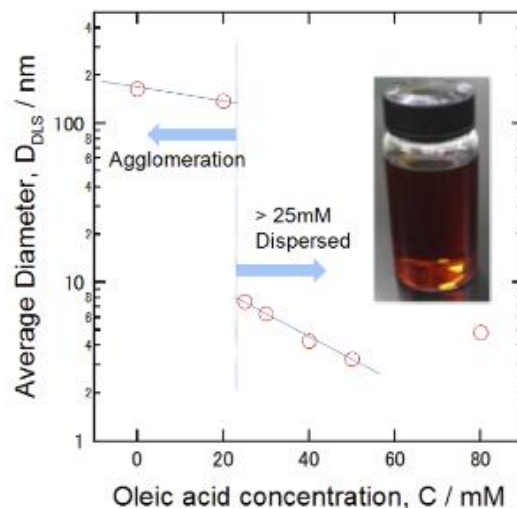


図 1-2-1 セリアナノ粒子コロイドにおける粒径のオレイン酸濃度依存性

続いて、ラングミュア・プロジェクト法によりセリアナノ粒子の単層膜を作製するためには、水面上にナノ粒子を展開する必要がある。その確認のために表面圧をトラフ面積に対してプロットする Π -A 曲線の測定を行なった。図 1-2-2 にヘキサンとセリアナノ粒子コロイド原液の比を 4:1~10:1 としたときの Π -A 曲線を示す。図中には、溶液に含まれるナノ粒子数から表面圧が上昇し始めるトラフ面積の推測値を点線で表している。予測値と実測値では約 10 cm^2 程度の誤差が見られるものの良い一致

を示し、水面上に単層膜が圧縮形成されていることが確認された。

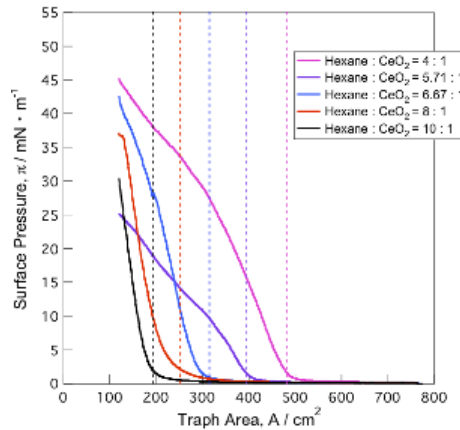
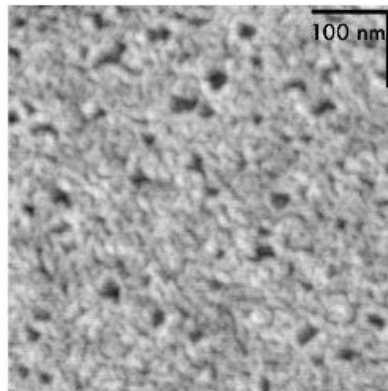


図 1-2-2 セリアナノ粒子コロイドの Π -A 曲線

図 1-2-3 にラングミュア・プロジェクト法により作製されたセリアナノ粒子単層膜（オゾン酸化後）の SPM 像を示す。累積時の表面圧は 15 mN/m とした。オゾン酸化により個々の粒子が鮮明に観察された。最大高低差が約 2 nm であり、これは XRD 回折から求められた値と良い一致を示すことから、Si 基板上に単層膜が作製されたと考えられる。Sm 添加セリアについても同様な単層膜が作製できた。



CeO₂ ナノ粒子単層 LB 膜

図 1-2-3 セリアナノ粒子単層膜の SPM 像 (TOPO 像)

つづいて、非セリア系材料としてペロブスカイト型酸化物である BSCF の作製を行なった。1150°C のか焼 (5 時間)、1200°C の焼結 (10 時間) で単相かつ 94% なる高い相対密度を有する BSCF を得た。図 1-2-4 にはその BSCF の粉末 X 線回折パターンを示す。大量合成に向く固相反応法を適用したため、焼結後にボールミルを施すことで挿入図に示すような触媒特性評価に適した粉末 100 g 程度を簡便に作製することができた。また、SEM-EDS により、得られた試料の金属成分が Ba_{0.5}Sr_{0.5}Co_{0.8}Fe_{0.2} の組成比となっていることを確認した。

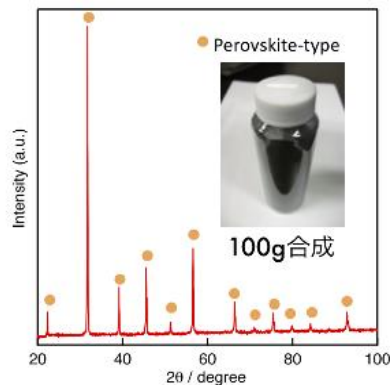


図 1-2-4 BSCF の粉末 XRD パターン

図 1-2-5 にはボールミルで粉砕した BSCF 粉末の 350°C における酸素吸放出特性を示す。まず、試料粉末 55 mg が熱重量天秤に設置され、空气中で昇温、350°C に等温維持された。120 分経過後、Ar-

5%H₂ ガス→空気→Ar-5%H₂ ガス→空気と 5 分毎に雰囲気気を切り換えた際の重量変化が赤線で示されている。図中には、熱天秤下流に設置された YSZ 製酸素センサー(900℃)の起電力 EMF を青線(右軸)として示している。1、2 回目の雰囲気ガス切り換えにおいて若干 OSC 値が減少しているものの、350℃なる低温領域で 200 μmol-O₂/g の酸素吸放出能を示した。この酸素量は化学式 Ba_{0.5}Sr_{0.5}Co_{0.8}Fe_{0.2}O₃ 当り 0.1 以下であるため、BSCF は分解することなく安定に酸素吸放出を繰り返せると判断される。Rh 触媒等を用いなくともこの温度領域で高速かつ可逆的に酸素が吸放出できる材料であるため非セリア系材料の有望候補の一つと考えられる。

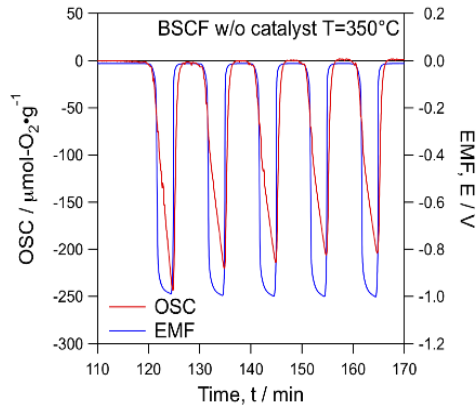


図 1-2-5 BSCF の 350℃における OSC 測定例

表 1-2-1 には、同じ試験を 500℃と 600℃で行なった結果を示す。600℃では化学式当りで 1 を超える酸素が吸放出されているので BSCF の結晶構造がペロブスカイト型から酸素空孔が規則化した構造をとるブラウンミレライト型に変化している事や、部分的な分解が起こっていると推察される。

表 1-2-1 BSCF の OSC

	OSC / μmol-O ₂ /g	Weight change (%)	Nonstoichiometry, δ
50℃	204	0.583	0.080
500℃	637	1.929	0.264
600℃	2498	7.670	1.049

この BSCF 粉末試料の触媒特性は評価グループ(AIST)により評価された。図 1-2-6 には BSCF 粉末試料(Fresh)、図 1-2-7 には同 aged 試料の触媒特性を示す。図中白抜き点線は基準触媒の特性を示す。BSCF 粉末のエイジングによる失活率は NO_x 転化率ベースで 16%となり、基準触媒の失活率 36%(NO_x 転化率)に比べて高い活性が得られる良好な結果となった。

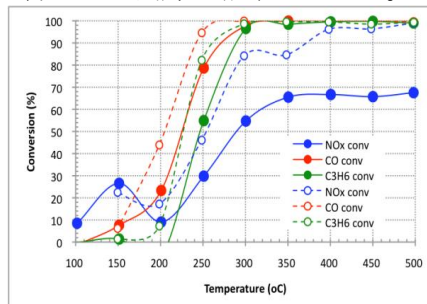


図 1-2-6 BSCF 粉末(Fresh)の触媒活性(評価グループ; AIST)

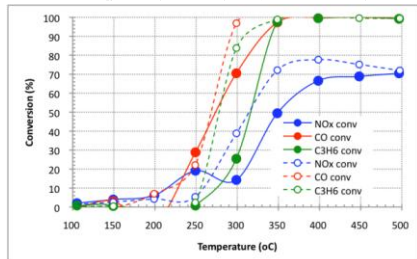


図 1-2-7: BSCF 粉末(aged)の触媒活性(評価グループ; AIST)

さらに小型ハニカムが作製され、実排ガスによる触媒性能評価が実施(宮城産業技術総合センター)さ

れた。その結果、サンプル毎にばらつきの少ない安定した触媒特性を示す事が確認された。

4 結言

本研究では、セリアナノ粒子とその単層膜の作製、ならびに非セリア系材料として Ba-Sr-Co-Fe 系ペロブスカイト型酸化物に着目し、大量合成手法の確立や酸素吸放出能の測定を行なった。セリアナノ粒子に関しては、紫外レーザー照射法により粒径 2~3 nm 程度のセリアナノ粒子ならびに Sm 添加セリアナノ粒子が得られた。そのセリアナノ粒子コロイドはラングミュア・プロジェクト法によりシリコン基板上に単層累積することができ、シンタリング挙動などを解析するテンプレートとして利用できる。さらに、Ba-Sr-Co-Fe 系ペロブスカイト型酸化物は良好な酸素吸放出能を示し、非セリア系材料の有望候補であることが示唆された。

研究開発項目①-3 : 実用触媒の観点に基づく設計指針

(本田技術研究所)

1 緒言

実用触媒の観点に基づく設計指針は、多くの研究者が一堂に会する当プロジェクトにおいて、その開発のベクトルを合わせる要となるものである。本田技術研究所は今までの実用触媒開発の経験を活かして、三元触媒 (Three way catalyst : TWC) 特性における重要な要因の一つに酸素吸放出能 (Oxygen storage capacity : OSC) があることを示し、当プロジェクト開発材の一次スクリーニングとして OSC 評価を提案した。さらに、基準 CeO₂ および基準触媒の設定、粉末触媒による二次スクリーニング、ハニカム触媒による実用性検討、と当プロジェクトにおける開発の流れを設定した。また、実用上重要な耐久性について熱 Aging 条件を提示し、プロジェクトとして超えるべきハードルを示した。

2 開発ステップの設定

i TWC における OSC の重要性

図 1-3-1 に TWC の空燃比 (A/F) に対する NO_x/HC/CO の浄化特性を示す。

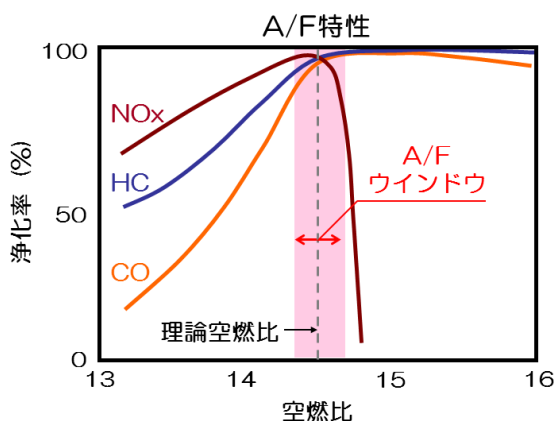


図 1-3-1 TWC 特性

図に示されるように、A/F が 14.6 (理論空燃比=ストイキ) 近傍でウィンドウと呼ばれるエリアが存在し NO_x/HC/CO がほぼ完全に浄化されることが分かる。この TWC 特性を支えている要因の一つが CeO₂ の持つ OSC 機能である。つまり、酸素過剰雰囲気 (リーン) では気相中の酸素を格子の中に取り込み、逆に酸素不足雰囲気 (リッチ) では格子中の酸素を放出することで触媒表面近傍をストイキ雰囲気に保ち、その結果、ストイキ同等の高い浄化活性を示すことが出来る。

また、ここでは詳細な説明は割愛するが、CeO₂ の OSC 機能は触媒劣化診断にも利用されており、現在の自動車触媒には欠かせないものとなっている。

上述したように TWC において CeO₂ は欠かせない触媒素材であり、当プロジェクトで取り組む CeO₂ 低減技術は OSC 機能を保持することが重要な課題であることが分かる。したがって、プロジェクト開発材の一次スクリーニングを OSC 評価に設定し、次いで触媒特性評価へと評価ステージを移して短期間で技術のブラッシュアップを図る流れを設定した。

ii 素材粉末開発から触媒評価まで

-30%CeO₂ 低減触媒技術の構築に向けて、次に示すような開発ステージを設け委託期間を効率よく運用する展開を設定した。

■OSC 機能向上を主眼とした CeO₂ 改良材/非 CeO₂ 材の開発（予備評価）

- ・基準 CeO₂（後述）に対し、30%以上の OSC 能を有する材料探索
- ・各研究機関ごとに OSC 能を評価し、候補材を選出する

■開発材の TWC 基礎特性評価（模擬ガスによる単体評価）

- ・模擬ガス定常試験による TWC 基礎特性評価
- ・基準触媒（後述）と同等以上の TWC 特性を有する開発材を選出する

■実車による EM 評価（実車での性能評価）

- ・実サイズ触媒を試作し、実車に装着しモード EM を評価
- ・評価結果からプロジェクト成果の達成位置づけを明確にするとともに技術課題を抽出

図 1-3-2 にプロジェクト展開イメージを示す。



図 1-3-2 展開スケジュール

3 プロジェクト内基準の設定

i. 基準 CeO₂

プロジェクト関係機関が多く検討対象技術も多岐に渡ることから、プロジェクト共通の基準が必要と考え基準 CeO₂ を設定した。基準 CeO₂ は第一稀元素化学工業製の一般的な量産 CeO₂ を選定し、同社よりプロジェクトに提供した。

プロジェクトで開発した CeO₂ 改良材/非 CeO₂ 材について、それぞれ OSC 能を評価し基準 CeO₂ との比較により一次スクリーニングを実施した。

ii. 基準触媒

次いで、プロジェクト開発材の触媒としての位置づけを明確にするために、上記基準 CeO₂ を用いた基準触媒を設定した。基準触媒は、以下のようなプロセスで設定した。

- ・CeO₂ に Rh、Pd、Pt を担持し、OSC 能の高い貴金属種を選定
- ・次に、残りの貴金属を Al₂O₃ に担持した触媒を準備し、上記の貴金属/CeO₂ 触媒と混合した触媒を合成し TWC 特性を評価して、最も活性の高い組成を基準触媒として選定

上記プロセスに基づき、プロジェクト基準触媒を 1wt%Rh/CeO₂+2.5wt%Pd/Al₂O₃(1:2) に設定した。

なお、基準触媒設定の詳細は、研究開発項目②-5 を参照のこと。

iii. Aging 条件

プロジェクト成果材の実用性を評価する上で、自動車触媒として重要な要素である熱耐久条件 (Aging 条件) を量産触媒開発の経験を踏まえて、以下のように設定した。

- ・温度 : 1000℃

- ・時間 : 20 時間
- ・ガス : 10%水蒸気入り空気

上記条件をプロジェクトの標準 Aging 条件と定め、プロジェクト成果材評価の統一化を図った。

4 結言

量産触媒開発の経験を活かして本プロジェクトに対し、

- ・CeO₂ 低減による自動車触媒への影響性
- ・基準 CeO₂、基準触媒を設定
- ・実用評価に欠かせない Aging 条件を提示

をしたことで実用観点に基づく材料設計指針を示すことが出来た。

研究開発項目①-4 : 酸素吸放出特性の実験的解析

(東北大学・富重研究室)

1 緒言

セリアは OSC 特性を有し、優れた三元触媒 (以下 TWC) の助触媒であるが、セリア代替材料の開発にあたっては、最終的な TWC 触媒の性能と代替材料が有する物性との関係を探る必要がある。OSC 能力は TWC 助触媒に最も大きく関係する物性と考えられるが、自動車触媒は非常に大きな空間速度で運転されることから OSC 総量だけでなく速い応答に対応した反応速度も重要である。代替材料開発を効率的に進めるためには、OSC 総量と反応速度を迅速に評価する手法の確立が必要である。

OSC 量を求める方法としては、試料に還元性ガス (多くは H₂, 本プロジェクトでは CO) を流し、消費された還元性ガス量や生成した CO₂ を求め、次に O₂ を流してまた消費量を求める方法がよく使われる。ただし、この方法は速度を見積もることが困難であることと、ガス流量を一定に保つために整粒などで圧力損失の影響を取り除くといった前処理操作が必要になる。本研究室では、本プロジェクトの短い期間での材料開発に合わせ、パルス法を活用した迅速評価法を確立するとともに各研究グループの試料の測定を行った。

2 実験

自作の流通式反応装置を用いた。石英製反応管 (外径 6mm) をキャリアの He ガスが流れるようになっており、反応管の手前にループをつないだ六方バルブを 2 個配置し、2 種類のパルスを流し込めるようにした。パルス用ループ 2 個には O₂ (5%) /He と CO (4%) /He をボンベから流量計を通して大気圧に減圧してつないだ。パルス 1 回あたり 1.0 μmol の CO、1.1 μmol の O₂ が導入されるループ体積となっており、この値は試料管側のキャリア圧力 (試料部分の圧力損失により変動する) には依存しない。また、キャリアにも He の代わりに O₂/He や CO/He を流すことが可能なように切り替えコックを整備した。反応管は管状炉の中をくぐらせて加熱を制御した。反応管の出口は質量分析計につないでオンラインで分析した。標準的な実験条件は、試料 10~50mg を O₂/He 下で 500°C に加熱後、He (50mL/min) に切り替え、1min ごとにパルスを導入した。まず CO パルスを安定するまで導入し、次いで O₂ パルスを安定するまで導入した。これを 3 回繰り返した。OSC 量は原則酸素消費量から求めた。

CO 酸化速度が遅い試料 (マグネタイト系試料など) や、OSC 量が非常に大きい試料では、CO パルスを 5 回導入した後にキャリアを CO/He に切り替えて還元後、酸素パルスを導入して酸素消費量から OSC を求めた (図 1-4-1)。この方法の適用により、CO パルスのみで還元すると 1 サイクル 2h 以上かかるような試料に対しても 30min 程度で終わることができ、試料前処理・昇温も含め 1 試料あたりの測定時間を 2.5 時間以下にすることができた。

3 結果と考察

本プロジェクトで使用した基準セリア A (BET 173m²/g)、B (BET 98m²/g)、および高温 aging 処理した試料、Rh を含浸担持した試料について OSC 測定を行った。基準セリア A は 500°C で 0.52mmol-0/g、300°C で 0.14mmol-0/g となった (結果はいずれも 3 サイクル目の O₂ 消費から求めた値、以下同じ)。Rh を含浸担持後では 500°C で 0.55mmol-0/g、300°C で 0.72mmol-0/g となった。低温で Rh 担持で OSC 量が増加したのは Rh への CO 吸着 (Rh 担持量 0.1mmol/g) が関係している可能性がある。他の研究グループで異なる担持法で調製された Rh 担持セリア A はいずれも 0.5mmol-0/g 程度となった。これより、500°C 測定では手間のかかる Rh の担持を行わずに OSC 総量が求められ、セリア材料およびセリア代替材料の OSC 量を決定するには Rh 担持操作なし、500°C 測定が最も適していることがわかつ

た。以下はこの方法で測定した OSC 値をもとに議論する。

セリア A を空气中 800°C で 20h 焼成すると 0.07mmol-O/g に、1000°C で 20h 焼成すると 0.006mmol-O/g に OSC 量が減少した。セリア B は as received で 0.39mmol-O/g、800°C 焼成で 0.05mmol-O/g、1000°C 焼成で 0.008mmol-O/g となった。TWC 助触媒として性能が劣るセリア B は A に比べ全体に OSC 総量が少ないが、顕著に aging させた後はほとんど差がなくなっている。似た組成の試料同士の比較については焼成前で比較を行うのが妥当と考えられる。

CO 酸化速度が遅い試料や、OSC 量が非常に大きい試料を測定する際を踏まえ、キャリアを CO/He に変えて還元を行い O₂ パルスをもちいて OSC 量を求める方法をセリア A に対して行ったところ、0.51mmol-O/g と通常の CO パルスによる還元を行った場合とほぼ同じ値となった。これより以後はいずれかの方法で分析した。

純セリア試料では、今野研セリア#120207-3 (BET 188m²/g) が最大 OSC (0.87mmol-O/g) となった。阿尻研(111)面露出セリア (粒子サイズ 30-50nm) は 0.08mmol-O/g、(100)面露出セリア (500°C 焼成により SDA 除去、粒子サイズ 7nm) は 0.35mmol-O/g と基準セリアに比べ少なかった。純セリアではほぼ表面積で OSC 総量が決定していると考えられる。

セリア代替試料では、阿尻研マグネタイト-シリカ、マグネタイト-ジルコニア試料が高い OSC 能 (>1mmol-O/g) を示し、マグネタイト-ジルコニアで最大 4mmol-O/g を記録した。マグネタイト-シリカでは TWC 特性の検討も行われており、セリアを全く含まないにもかかわらず活性指数 79~92 であった。なお、マグネタイト系試料は CO パルスにおける消費速度がきわめて小さい傾向を示しており、CO 酸化能力の改善がさらなる高性能化につながるものと考えられる。また、小俣研ペロブスカイト型 CaMnO₃ も非常に高い OSC 能 (3.3mmol-O/g) を示した。類似試料である Ca_{0.4}Mn_{0.6} 酸化物で TWC の適用がされており、セリアなしとしては活性指数 86~99 と良好な値を示した。いずれの代替試料も CO および炭化水素除去の活性指数が高く NO_x が低くなっており、NO_x 除去に有効な触媒開発には別の評価方法が必要な可能性がある。

反応速度に関しては、ごく一部の例外 (CaCoO₃ など) を除き O₂ パルスの反応速度はきわめて速く、O₂ 消費が終わるまで導入したほぼ全ての O₂ が反応した。CO への反応速度は試料により大きく変化した。反応速度はおおむね Rh/セリア > セリア > セリア-ジルコニア > ペロブスカイト系代替試料 > マグネタイト系代替試料 > セリア-シリカ となった。Rh 担持法によっても速度は変化し、猪股研調製の Rh/セリアが最も反応速度が大きかった。この試料を元に調製した TWC は CO 転化率が基準 TWC に比べて高く、触媒性能に CO 反応速度が反映されることがわかった。

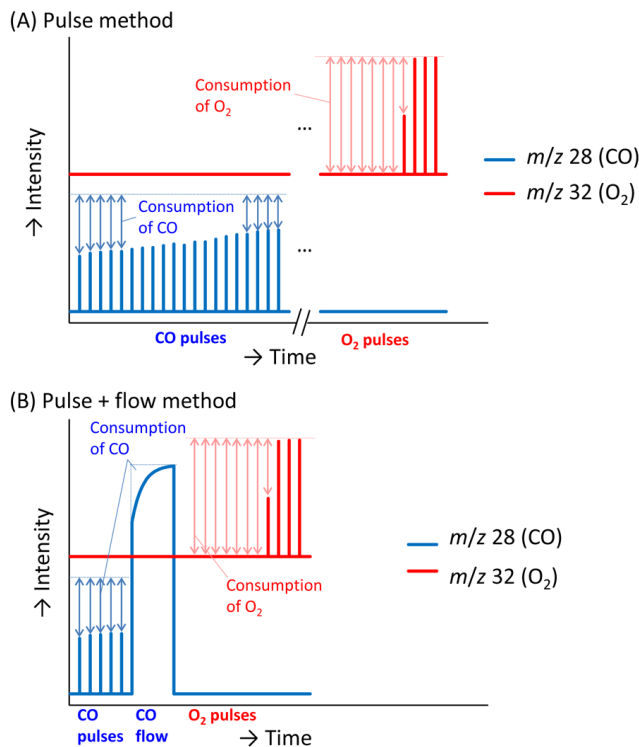


図 1-4-1 OSC 測定方法

4 結言

パルス法およびパルス・フロー併用法の適用により、セリアおよび代替セリア試料の OSC を迅速に評価できることがわかった。CO 反応速度は TWC における CO 転化率に影響し、代替セリア試料の OSC 総量は TWC の性能全般（特に CO、炭化水素除去）に影響する傾向がみられた。

研究開発項目②-1-1：形態制御による高性能化

(東北大学・今野研究室)

1 緒言

高温条件下で起こりうるセリアのシンタリングを抑制するため、ガス透過性に優れた多孔質シリカとナノシリカを複合化し、シリカ複合化によるシンタリング抑制効果を検証する。

2 実験

セリア源として硝酸二アンモニウムセリウム (IV)、シリカ源としてオルトケイ酸エチル (TEOS)、鋳型分子としてヘキサデシルトリメチルアンモニウムブロミド (CTAB)、pH 調整剤としてアンモニアを使用した。セリア源と CTAB を溶かした溶液を 80°C に昇温し、そこへアンモニアを投入し塩基性溶液とした。アンモニア投入から 2 分後、TEOS を含むエタノール溶液を加え、80°C で 8 時間攪拌した。なお、反応体積は 50 cm³、各試薬の濃度は [Ce(NH₄)₂(NO₃)₆]=10 mM, [TEOS]=100 mM, [CTAB]=10~100 mM, [NH₃]=100~320 mM, [CH₃CH₂OH]=4.3 M とした。得られた溶液を遠心分離により固液分離し、真空乾燥後、400°C で 2 時間熱処理することで、鋳型分子 CTAB を除去した。生成物の形態観察には走査透過型電子顕微鏡 (FE-STEM、HD-2700) を用いた。TEM 観察用試料はコロジオン膜張付メッシュ (200 メッシュ) に生成物の懸濁液を滴下し、自然乾燥させたものを用いた。

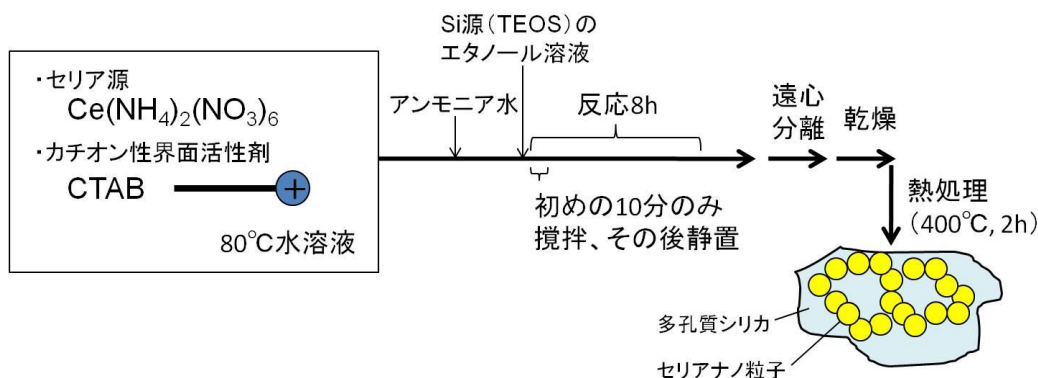


図 2-1-1-1 セリア-多孔性シリカ複合体の調製法

3 結果と考察

<セリア-シリカ複合体の調製>

初めにセリア源を含む水溶液にアンモニアを滴下して、溶液 pH が生成物の形態に与える影響を調べた。pH5 程度では溶液が白濁し始め、pH6 程度でピンク色を呈した。さらに pH を 8.5 まで上げると、析出物が観察された。この結果をもとに pH8 から 9 の範囲でセリアとシリカの複合化を行った。pH9 ではセリアと複合化しないシリカが多く観察されたが、pH8 では生成したセリアとシリカが良好に複合化した生成物が電子顕微鏡でも観察された。さらにシリカ複合体を詳細に観察すると、粒径 2-3 nm 程度のシリカがシリカ複合体に埋め込まれていた。BET 法では高い比表面積 570 m²/g が得られたことから、生成したシリカ複合体は、ナノサイズのセリアを取り込んだ多孔質シリカであると判断した。

<調製した複合体の耐熱性評価>

比較のため、まず基準セリア粒子を 800°C、10h で焼成した。焼成前の基準セリア粒子は粒径が 10nm 前後で比表面積が 173m²/g の粒子であったが、そのセリア粒子を 800°C、10h で焼成すると、粒径が著しく増大し、その大きさは数 100nm 程度に達し大きな凝集体を形成した。このときに比表面積は 47m²/g まで大幅に低下した。

一方、多孔質シリカに取り込まれたセリアナノ粒子については、多孔質シリカと複合化しない場合と結果が大きく異なった。すなわち、焼成前のセリアナノ粒子の大きさが数 nm であるのに対し、多孔質シリカと複合化したセリアナノ粒子は 800°C、10h 焼成してもナノサイズが維持されていた。比表面積にも著しい低下は見られず、焼成前の比表面積が 570 m²/g であるのに対し、焼成後の多孔室

シリカ-セリカナノ粒子複合体の比表面積は 540m²/g であった。さらに焼成温度を高めた 1000℃の焼成条件では比表面積が 63m²/g まで大幅に低下したが、生成するセリア凝集体のサイズは 10nm 程度に抑えることができた。

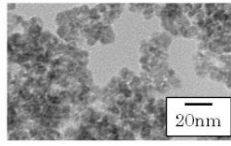
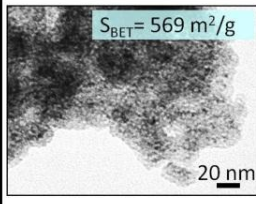
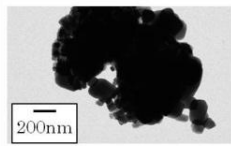
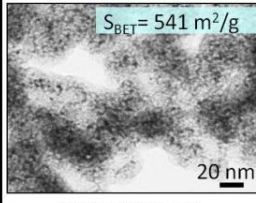
	基準セリアA	セリア-多孔性シリカ複合体
焼成前	 <p>セリア1次粒子径d: 10 nm前後 比表面積 S_{BET}: 173 m²/g</p>	 <p>S_{BET} = 569 m²/g d: 数 nm程度</p>
800℃, 10h焼成後	 <p>d: 測定不能 S_{BET} < 50 m²/g</p>	 <p>S_{BET} = 541 m²/g 800℃で焼成しても 粒径数 nmを維持</p>

図 2-1-1-2 多孔性シリカとの複合化によるナノ粒子シタリング抑制

<カチオン性界面活性剤添加の効果>

1000℃の焼成条件では、比表面積が大幅に低下したことから、カチオン性のシランカップリング剤を添加し、その比表面積低下の抑制効果を検証した。下図に示すように、セリア表面に対して親和性の高いカチオン性シランカップリング剤を微量添加することで、1000℃焼成条件で生じていた著しい表面積低下をわずかに緩和できることがわかった。

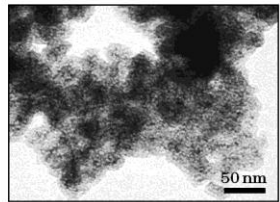
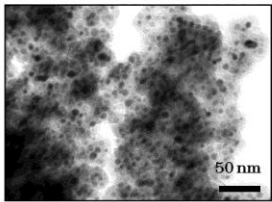
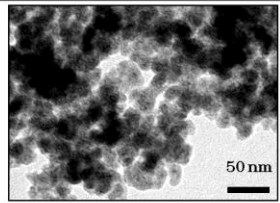
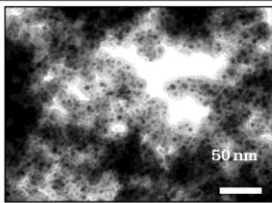
	カチオン性シランカップリング剤なし	カチオン性シランカップリング剤添加
焼成前	 <p>比表面積 S_{BET}: 569 m²/g</p>	 <p>S_{BET}: 353 m²/g</p>
1000℃, 10h焼成後	 <p>S_{BET}: 63 m²/g</p>	 <p>S_{BET}: 80 m²/g</p>

図 2-1-1-3 多孔性シリカとの複合化によるナノ粒子シタリング抑制

<その他の検討事項>

中空構造を有する複合粒子の新規合成法として、セリアナノ粒子とアニオン性界面活性剤共存下で多孔性中空複合粒子（下図参照）を合成する手法を新たに開発した。本法は、ナノ粒子とアニオン性界面活性剤共存下でシリカ前駆体を加水分解・縮合させるだけであり、簡便な操作でナノ粒子を多孔性シェルに取り込んだ新しい中空粒子を合成できるのが特徴である。

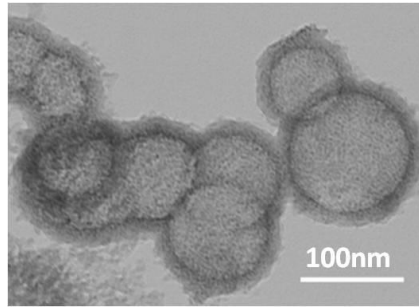


図 2-1-1-4 セリアナノ粒子とシリカからなる多孔性の中空粒子

以下では、中空複合粒子合成条件に関する詳細について記す。本法では溶液 pH の調整にアンモニアを用いているが、アンモニアを過剰に添加した条件(初期 pH11 以上)ではほとんどの生成物がゲル状であり凝集していた。一方、アンモニアを適度に加えた初期 pH9-10.5 程度ではセリアナノ粒子を外殻に含む中空シリカ粒子が得られた。このとき pH9.24 で生成した中空シリカ粒子の表面は pH10.26 の条件のより平滑であった。

この結果に関して、シリカ生成反応の観点から以下のように考察した。一般に、シリカ源であるシリコンアルコキシドの加水分解反応を利用したシリカ生成系では、溶液 pH が反応速度に大きな影響を及ぼし、シリコンアルコキシドの加水分解反応は水酸化イオン濃度の一次に比例すると言われている。そこで、反応終了後の溶液 pH を測定したところ、いずれの条件でもシリコンアルコキシドの加水分解反応ともに pH が低下する傾向が見られた。

さらに、pH は液中のシリカ溶解度にも大きな影響を及ぼし、低 pH ほど溶液からのシリカ析出が起きやすい。したがって、反応開始直後は、急激なシリカ生成にともなうセリアナノ粒子の分散安定化を招かない程度に pH を高くし、反応中期以降は溶液から自発的にシリカが析出するような pH を設定することが、表面平滑性の高い中空シリカ粒子の合成には重要であると考えられる。

4. 結言

以上の結果から、多孔質シリカに埋め込まれたセリアナノ粒子は 800°C の焼成までは、ナノ構造を維持できるが、それより高温の 1000°C 焼成では、十分なシンタリング抑制効果を発揮できないことがわかった。

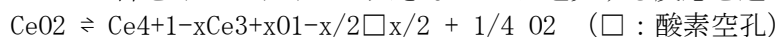
また、セリアナノ粒子とアニオン性界面活性剤共存下でシリカ前駆体を加水分解・縮合させるだけで、多孔性シェルを有する中空粒子を簡便に合成できることを明らかにした。

研究開発項目②-1-2 : 形態制御による高性能化

(東北大学・佐藤研究室)

1 緒言

セリアは立法晶螢石構造を有し、セリウム原子が 8 個の酸素原子に囲まれた酸素 8 配位構造を取っている。結晶の安定性は原子サイズに依存し、酸素 8 配位構造を取る金属酸化物における金属イオンと酸化物イオンの理想的なサイズ比は、金属イオンと O²⁻ のイオンサイズの比で決まり、8 配位酸化物では、イオン半径比 $r(\text{Mn}+)/r(\text{O}^{2-})=0.732$ が理想値であるが、セリアでは、 $r(\text{Ce}^{4+})/r(\text{O}^{2-})=0.703$ であり、Ce⁴⁺ は O²⁻ と理想的な 8 配位構造をとるには小さいため、次式に示されるように酸素を放出し Ce⁴⁺ の一部をイオンサイズの大きな Ce³⁺ に還元する反応を起こしやすい。



これが、セリアが酸素放出・吸蔵特性を示す原因と考えられ、セリアの酸素放出(吸蔵)特性の向上のためには Ce⁴⁺ ($r=0.097 \text{ nm}$) よりイオンサイズの小さな金属イオンを固溶することが効果的と考えられ、実際これまでにセリアにイオンサイズの小さな Zr⁴⁺ ($r=0.084 \text{ nm}$) の固溶により酸素吸蔵・放出特性が改善され実用化されている。本研究では、Zr⁴⁺ よりさらにイオンサイズの小さな金属イオン (Ti⁴⁺, Nb⁵⁺ 等) を固溶することにより、Ce_{1-x}Zr_xO₂ 触媒の酸素吸蔵・放出特性を凌ぐ新たな触媒を開発する。なお、材料の化学組成は、シンタリング特性にも影響する。そこで、本研究では、酸素吸蔵・放出特性を損なうことなく、シンタリングを抑制できる化学組成の最適化を図る。なお、従来の自動車排ガス浄化用セリア触媒には、不定形の微粒子が使用されているが、セリアの触媒活性は結晶形態により異なることが知られており、特に (100) 面の酸素が放出されやすい。そこで本研究では、酸素放出・吸蔵特性の優れた (100) 面を露出した Ce_{1-x}Zr_yM_zO₂ (M: 上記研究で決定されるドープ金属) ナノ粒子を合成し、触媒活性の高度発現を図ることを試みた。

2 実験

所定濃度の混合金属イオン水溶液にアンモニア水を添加し得られた非晶質ゲルを回転式加熱反応装置（回転溶解反応試験機：三愛化学 RDV-TM2）を用いて 200℃で 20h 熱処理し、セリア基複合金属酸化物ナノ粒子を合成した。得られた試料について、XRD による相同定（卓上型 X 線回析装置：ブルッカー D2PHASER）、TEM および SEM による微細構造観察、CO-N2 混合ガスおよび空気流通下 TG-DTA（差動式示差熱天秤 TG-DTA 付加型システム：リガク TG8120）測定による OSC 測定を行った。また、Ce(NO3)3 水溶液に NaHCO3 水溶液を添加し生成した非晶質ゲルを種々の温度で 1 h エージングし得られた前駆体を空气中 400℃で焼成し花状セリアを合成した。

3 結果と考察

3.1 セリアの組成制御

図 2-1-2-1 に種々の試料の焼成前および焼成後（1000℃、20 h）の試料の XRD パターンを示す。ソルボサーマル反応後の試料は微結晶であり蛍石構造のセリアに帰属されるブロードな XRD ピークを示した。焼成後の試料はシャープな回折ピークを示し、結晶成長の進行が示唆された。なお、Ce_{0.5}Zr_{0.5}O₂ および Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ は焼成後も蛍石構造の単一相であったが、Ce_{0.5}Zr_{0.4}Ti_{0.1}O₂、Ce_{0.5}Zr_{0.1}Fe_{0.05}Nb_{0.05}O₂ および Ce_{0.5}Zr_{0.4}Bi_{0.05}Nb_{0.05}O₂ では相分離の進行が認められた。

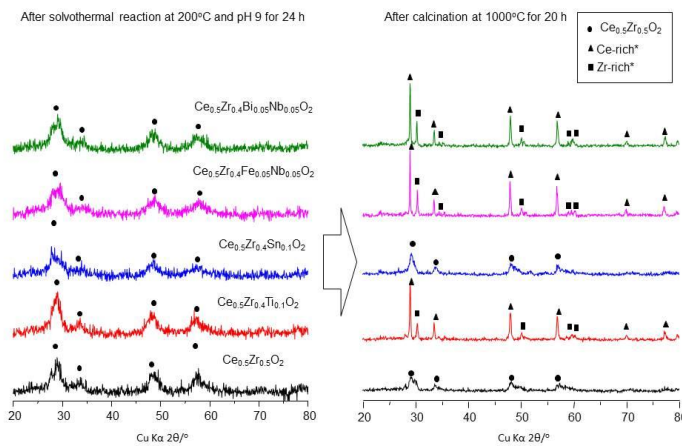


図 2-1-2-1 ソルボサーマル反応後および 1000℃、24 h 焼成後の試料の XRD パターン

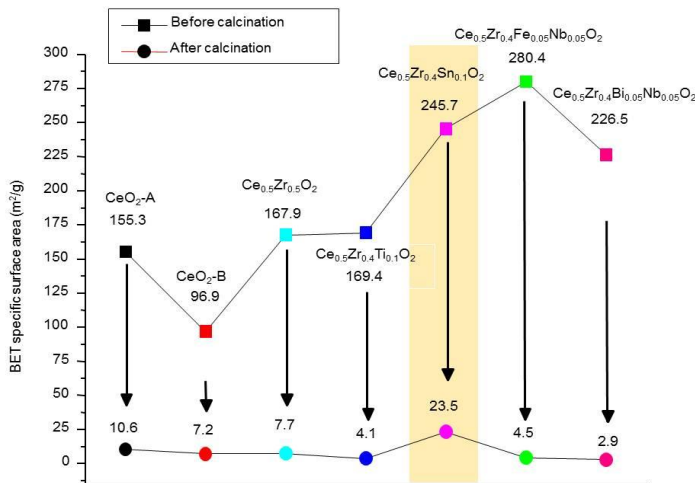


図 2-1-2-2 焼成前および 1000℃、24 h 焼成後の試料の BET 比表面積

焼成前および焼成後の試料の BET 比表面積を標準セリア (Ceria-A および Ceria-B) の値とともに図 2-1-2-2 に示す。焼成前の試料はいずれも 100 m²/g 以上の高比表面積を有していたが、1000℃、20 h の焼成によりほとんどの試料の比表面積は 10 m²/g 以下に減少した。なお、Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ は焼

成後の 23.5 m²/g の比較的大きな比表面積を有し、優れた耐熱性を示した。

種々の試料の焼成前および 1000°C、24 h 焼成後の OSC を図 2-1-2-3 に示す。焼成前に試料はいずれも高い OSC を示し、予想通り、Ce⁴⁺よりイオンサイズの小さな金属イオンの固溶により OSC の向上が認められ、特に Zr⁴⁺+Co²⁺や Zr⁴⁺+Sn⁴⁺のコーピングが OSC の向上に効果的であった。なお、焼成後標準セリアや Ce_{0.5}Zr_{0.4}Ti_{0.1}O₂、Ce_{0.5}Zr_{0.1}Fe_{0.05}Nb_{0.05}O₂ および Ce_{0.5}Zr_{0.4}Bi_{0.05}Nb_{0.05}O₂ では著しく OSC が低下したが、Ce_{0.5}Zr_{0.5}O₂、Ce_{0.5}Zr_{0.4}Co_{0.1}O₂、Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ および Ce_{0.5}Zr_{0.4}Fe_{0.1}O₂ は高い OSC を示し、特に Ce_{0.5}Zr_{0.4}Co_{0.1}O₂ および Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ が耐熱性に優れていることがわかった。これより、Ce⁴⁺よりイオンサイズの小さな金属イオンの固溶は OSC の向上に効果的であるが、イオンサイズが小さすぎると安定な固溶体を形成できないため高温焼成すると相分離を生じ、OSC が低下すると考えられ、Co²⁺や Sn⁴⁺のサイズが適切なためと思われる。

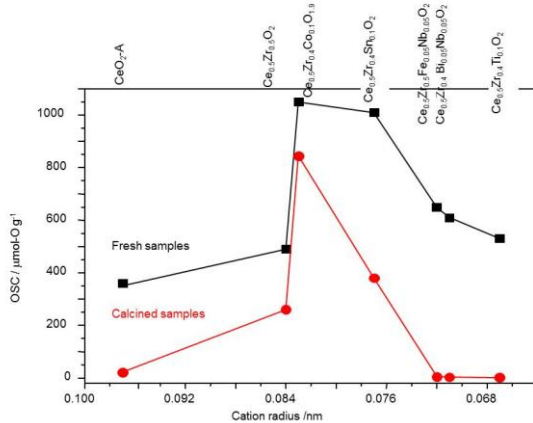


図 2-1-2-3 焼成前および 1000°C、24 h 焼成後の試料の OSC

図 2-1-2-3 より Zr⁴⁺+Co²⁺のコーピングが OSC の向上に効果的であることが示されたが、Co₃₀₄ ナノ粒子が 100°C以下の低温で優れた CO 酸化触媒活性を示すことが報告されていることから、Co₃₀₄ ナノ粒子の OSC について検討した。なお、Co₃₀₄ ナノ粒子は、酢酸コバルトをエチレングリコールに溶解した後炭酸ナトリウムを添加し生成した非晶質ゲル溶液を 160°Cで 1h 加熱し合成した。生成物は直径 15nm 程度の分散性の良いナノ粒子であり Co₃₀₄ のブロードな X 線回折パターンを示した。図 2-1-2-4 に Co₃₀₄ ナノ粒子および種々の試料の OSC を示す。Co₃₀₄ ナノ粒子は単独でもセリア基複合金属酸化物より著しく高い OSC および OSC 速度を示し、セリア-ジルコニアと複合化すると更に OSC の向上が認められた。

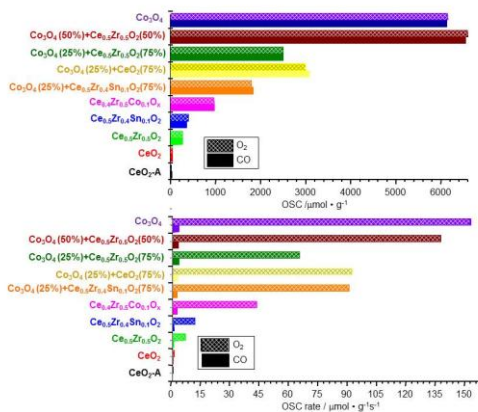


図 2-1-2-4 1000°C、24 h 焼成後の種々の試料の OSC

自動車排ガス浄化三元触媒には、セリア/γ-アルミナ/貴金属複合体が使用されることから、上記試料を γ-アルミナ粒子とボールミル混合し 1000°C、24 h 焼成後の OSC 測定を評価した結果を図 2-1-2-5 に示す。セリア基複合金属酸化物では γ-アルミナ粒子との複合化により著しく OSC が向上しており、複合化による耐熱性の向上が認められる。一方、Co₃₀₄ ナノ粒子は単独では最も優れた OSC および OSC 速度を示したが、γ-アルミナ粒子との複合化により OSC が低下した。これは、焼成時に Co₃₀₄ が γ-アルミナと反応し、アルミン酸コバルトを生成したためと思われる。

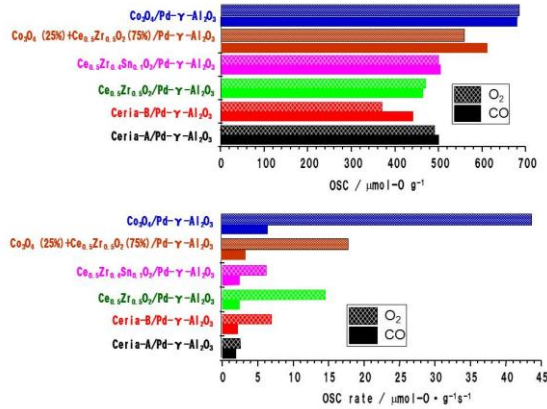


図 2-1-2-5 種々の試料とγ-アルミナ粒子との複合体の 1000℃、24 h 焼成後の OSC

3.2 セリアの形態制御

Ce(NO₃)₃ 水溶液に NaHCO₃ 水溶液を添加し生成した非晶質ゲルを種々の温度で 1 h エージングした時の生成物の SEM 写真を図 2-1-2-6 に示す。エージング温度によりファイバー状、板状、花状の Ce₂(CO₃)₃ · 8H₂O 粒子が生成され、400℃で焼成すると形態を保持した CeO₂ 粒子に転換された。なお、本実験条件で得られた花状セリアは、比表面積が低く、OSC も低かったことから更なる高比表面積化を図ることが必要である。

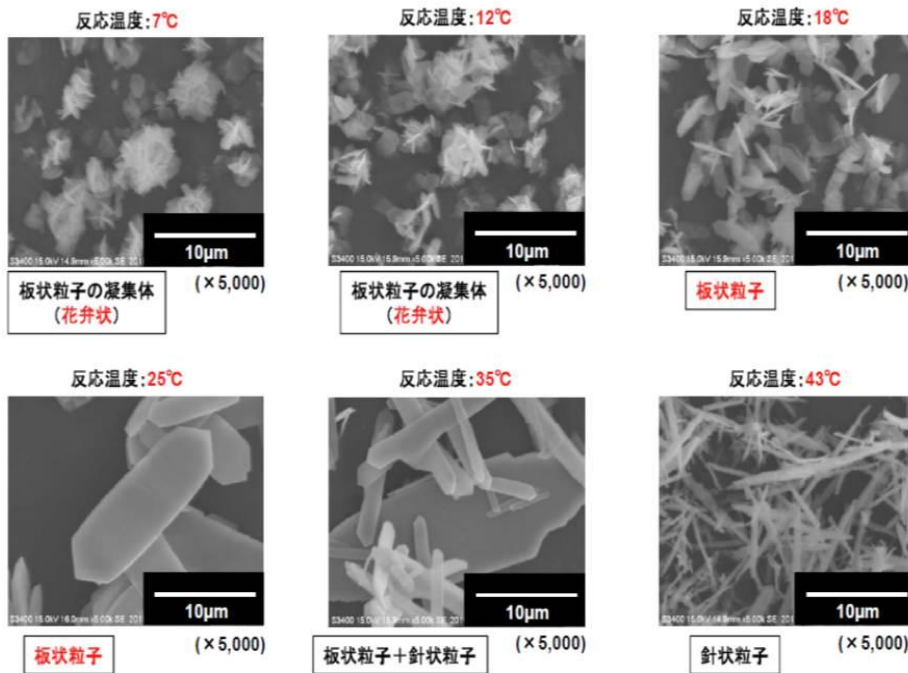


図 2-1-2-6 ソルボサーマル法による Ce₂(CO₃)₃ · 8H₂O を前駆体とするセリアの形態制御

3.3 試料の排ガス浄化特性

本研究で合成された試料の中で OSC が高かった Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ および Ce_{0.4}Zr_{0.5}Co_{0.1}O₂-δ について TWC 触媒化して排ガス浄化特性を評価した。10 vol.% 水蒸気雰囲気中 1000℃で 20h エージング処理した後の排ガス浄化特性評価結果を図 2-1-2-7 に示す。Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ では、350℃以上で NO_x 浄化率が基準セリア (点線) より高く、CO 浄化率はほぼ同等であったが、C₃H₆ 浄化率が低かった。一方、Ce_{0.4}Zr_{0.5}Co_{0.1}O₂-δ は Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ と比較し、CO および C₃H₆ 浄化率が向上したが、NO_x 浄化率が低下した。これより、Ce_{0.4}Zr_{0.5}Co_{0.1}O₂-δ は Ce_{0.5}Zr_{0.4}Sn_{0.1}O₂ より酸化活性が高いが、還元活性が低いことが示唆され、Ce-Zr-Sn-Co 系の組成最適化により排ガス浄化特性の向上が期待される。

4 結言

ソルボサーマル反応によりセリア基複合金属酸化物ナノ粒子を合成し、OSC を Zr⁴⁺-Co²⁺及び Zr⁴⁺-

Sn4+コーピングで 55 倍及び 22 倍、Co3O4 単独、Co3O4/Ce0.5Zr0.5O2、Co3O4/CeO2 複合体で 340 倍、356 倍及び 159 倍に向上 (1000°C、20 h 焼成、測定 600°C) できたことから、セリアの使用量 30%削減は可能と思われる。なお、Co3O4 の利用ではセリアを完全に代替できるの可能性が有るが、 γ -Al2O3 との反応抑制が必要である。また、均一沈殿反応による花状セリア合成法を開発したが、比表面積が小さかったことから、高比表面積化を図ることが必要である。なお、他の複合金属酸化物の花状セリア合成についても更なる検討が必要である。

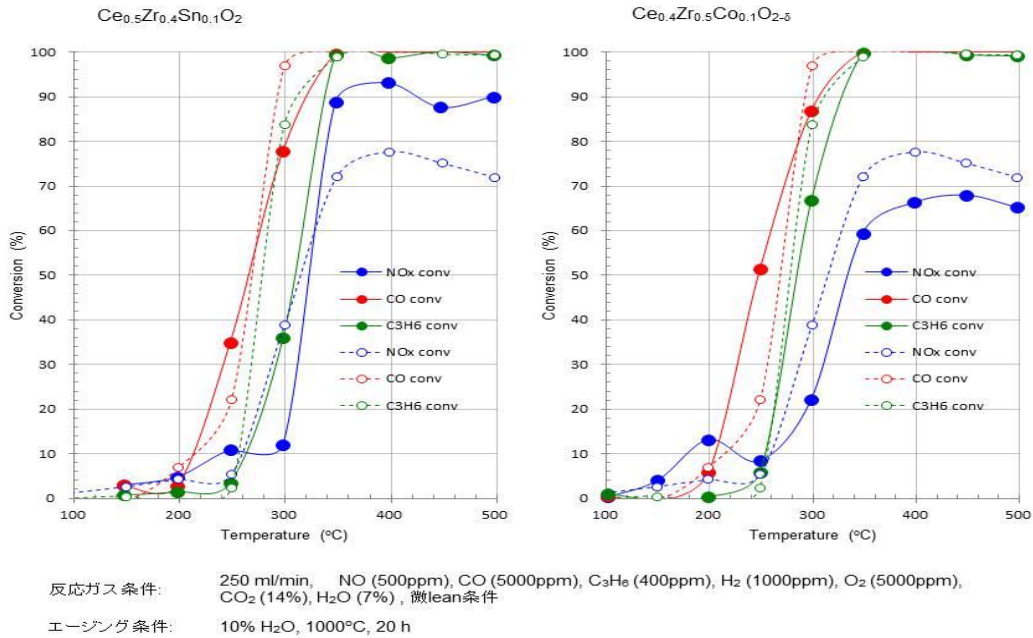


図 2-1-2-7 TWC 触媒化試料の排ガス浄化特性

研究開発項目②-2-1 : セリア-アルミナ複合化

(産業技術総合研究所)

1 緒言

ゾルゲルは均一微粒子を調製可能な点において、また複数成分を有する場合にはこれら微粒子を均一混合可能な点において魅力的な触媒調製技術といえるが、これまでの作製方法では高温での耐熱性が十分でないなどの欠陥があった。本プロジェクトではゾルゲルをベースとした作製方法の改良により、OSC 性能や排ガス触媒性能に優れた高性能セリア系触媒を開発した。

2 実験

ゾルゲル反応をベースに各種セリア系触媒を作製した。作製スキームを図 2-2-1-1 に示す。OSC 評価は、作製したセリア系触媒を標準パラジウム触媒と物理混合した後に 1000°C20h の水蒸気耐久試験を実施してから行い、基準セリア触媒のそれと比較した。OSC 測定はガスクロマトグラフを利用した GC-パルス法と、熱重量天秤を利用した TG-流通法を採用した。

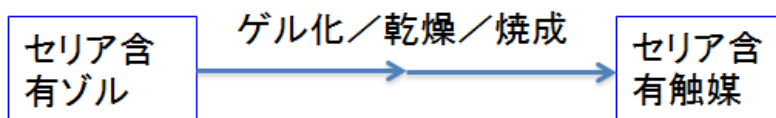


図 2-2-1-1 セリア系触媒作製スキーム

また作製したセリア触媒の OSC とセリウム原子の酸化・還元との相関を調べるため X 線吸収分光装置を導入し、本装置内に設置可能な In-situ セルを作製した。今回は簡便な評価法として、高温・高濃度酸素雰囲気処理した材料を 100%Ce⁴⁺、Ce(NO)₃・6H₂O を Ce³⁺の基準試料として、500°C で水素還元した試料の Ce L3 XANES スペクトルをパターンフィッティングする方法で Ce の還元割合を評価した。

3 結果と考察

○省セリア材料の創製

本技術により作製されたセリア触媒は基準セリア触媒より高い OSC を示すことが確認された。この技術を応用して二成分系セリア触媒、三成分系セリア触媒、四成分系セリア触媒、五成分系セリア触媒、の作製技術も併せて開発した。作製した幾つかのセリア系触媒の OSC を表 2-2-1-1 にまとめた。

表 2-2-1-1 各種セリア触媒の OSC[micro mol- O2/g]

試料	基準セリア	触媒A	触媒B	触媒C	触媒D
OSC	24	119	116	135	163

本技術を駆使して各種セリア系触媒を作製することで OSC 性能を一層向上させることが出来た。例えば触媒 D では基準セリア触媒に比べて 4-7 倍の OSC が認められた。これは理論的には 75-86%のセリア削減が可能となるものである。触媒 A については実機試験に資するための大量合成も実施された。触媒 A と触媒 E の排ガス浄化性能も評価した (図 2-2-1-2)。触媒 A は CO や NO_x の浄化性能が基準触媒に比べて優れていること、また触媒 E は失活率が低いなどの利点が判明した。

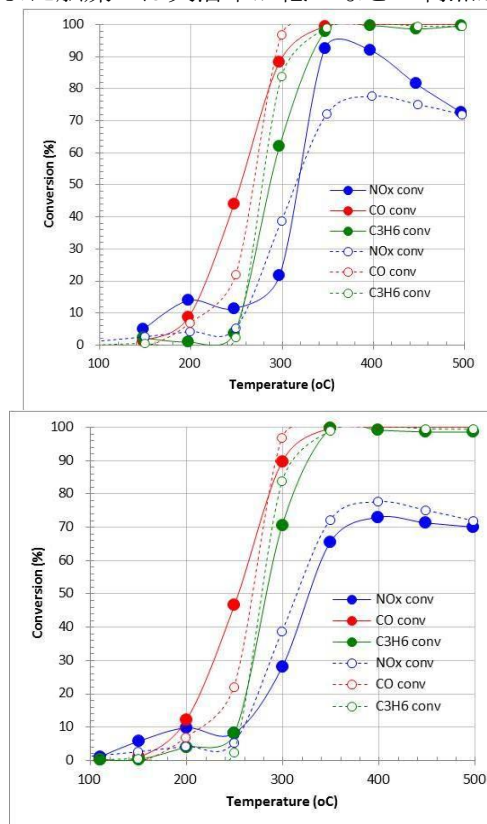


図 2-2-1-2 触媒 A(上)と触媒 E(下)の CO, NO_x, C3H6 浄化性能

○省セリア材料の OSC とセリウム原子価との相関

X 線吸収分光測定装置 (リガク R-XAS Looper、本プロジェクト予算で購入) 用の in-situ セルを作製し (図 2-2-1-3)、調製触媒の酸化・還元による Ce 価数変化を調べた。赤外吸収スペクトル測定用の in-situ セル (幕張理化硝子 2000 series) の両端にカプトンフィルムを貼付したステンレス板を取り付けた。ガス流出を防ぐため、バイトン O リングでシールした。マスフローコントローラ (フジキン FCST 1000) でガス (Ar, He, H₂, O₂) を適切な濃度に混合し、サンプルを加熱処理した。本処理は、装置外で行った。セルは十分に冷却された後、装置試料室にセットされた。試料位置は透過してくる X 線の強度を観測しながら、XZ ステージで調整出来るようになっている。

図 2-2-1-3
試料室に設置された In situ XAFS 測定セル



図 2-2-1-4 に、セリアとジルコニアを 5:5 のモル比で調製した試料[CZ(5:5)]を標準パラジウム触媒と物理混合し、2%H₂/Ar 気流中、500°Cで 10 分間還元した場合の Ce L₃ 吸収端近傍の XANES スペクトルを示す。実測のスペクトル(青丸)は、酸化後の同試料と Ce(NO)₃・6H₂O の XANES スペクトルの重ね合わせで良く再現できた(赤線)。フィッティングから得られた Ce³⁺の割合は、51%であった。同様の条件で Rh や Pt を担持した、セリア-ジルコニア試料の Ce の還元割合が報告されているが、それらと同程度の値であり、調製手法の適用性がうかがえる。同じ条件で、基準セリアの Ce 還元割合を見積もったところ、8.5%と大幅に低い値となった。同様の傾向は、上述の OSC 測定においても見られている。1000°C耐久後には、CZ(5:5)試料の還元割合は、6.8%まで低下した。

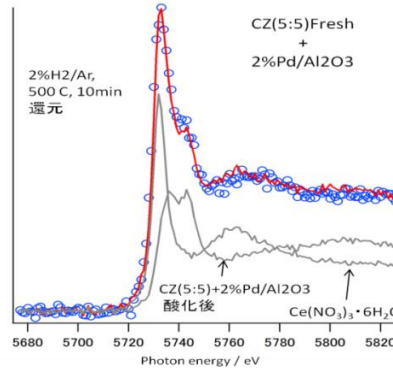


図 2-2-1-4 Ce L₃ XANES スペクトルのフィッティング例

図 2-2-1-5 では、これら Ce 還元割合を横軸に、CO パルス法による OSC の値を縦軸にプロットした。CZ(5:5)の Fresh 試料については、OSC が未測定であったため、800°C耐久後の値で代用した。このため、OSC 値は本来よりも低めに見積もられており、これを勘案すると、XANES フィッティングより得られた還元割合と OSC の間には、良い相関があると言える。酸化および還元のいずれの条件下においても、Zr の酸化数は 4+であることが報告されており[1]、この結果は妥当なものと考えられる。

なお、基準セリアの Ce 還元割合は、上述の条件では 8.5%であったが、50%H₂/Ar 中、30 分間還元を施すと、55%に上昇した。同条件で、CZ(5:5)試料を処理すると、還元割合は 70%と比較的近い値となった。これらの結果から、Zr イオンの存在により、バルク内の酸素の易動度が大幅に向上していることが分かった。

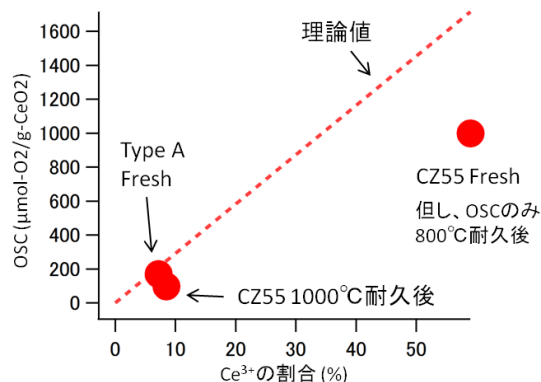


図 2-2-1-5 Ce 価数変化と OSC の相関

4 結言

ゾルゲル調製技術をベースとして耐熱性能に優れた各種セリア系触媒を創製した。触媒 D では、基準セリアに比べて 4-7 倍の OSC が認められ、これにより、理論的には 75-86%にのぼるセリア削減の可能性を実証することが出来た。また、Ce XANES スペクトルのフィッティングより、Ce の還元割合を求め、GC パルス法による OSC との間に良い相関があることが分かった。

参考文献

[1] J. A. Rodriguez et al., J. Mol. Catal. A228 , 11 (2005).

研究開発項目②-2-2 : 耐熱性アルミナの開発と自動車用触媒への応用 (株式会社ルネサンス・エナジーリサーチ、八戸工業高等専門学校)

I 耐熱性 γ -アルミナ製造方法の最適化

1 緒言

セリアの大幅削減と触媒性能の向上の両立を目指して、1000°C以上の過酷な高温・高湿度雰囲気でも α 化の進行を完全に防ぎ、高表面積を維持する極めて耐熱性に優れた触媒担体の開発を目的とする。本研究開発では 1000°C以上の高温かつ頻繁な起動停止、サーマルショックに耐える触媒担体の開発が必要である。また、 γ -アルミナの α 化を抑制するための助触媒は酸性酸化物系であるので副作用として排ガス浄化性能の低下及び、排ガス浄化条件下でカーボン析出を加速する可能性がある。そのため、本研究開発では、 α 化防止効果と排ガス浄化性能、カーボン析出のバランスを考慮しつつ助触媒の複合化を含めた添加量、添加方法の最適化について検討した。

2 実験

2-1 耐熱性アルミナの調製

技術シーズに基づく耐熱アルミナの調製を行い、耐熱性向上のために添加物 A の効果について X 線回折および窒素吸着 BET 法による比表面積評価によって検討した。

さらに、耐熱アルミナ合成の過程で、添加剤 B を加えその効果についても評価した。

3 結果と考察

3-1 添加物 A による Al₂O₃ の耐熱性向上

添加物 A を加えることによって比表面積の向上が認められた。図 2-2-2-1 に示すように添加量は、10wt%が最も高い比表面積を示した。添加剤 A を 10wt%含んだ耐熱アルミナは、1200°C50h の空气中焼成後も 79m²/g の高い比表面積を維持しており、XRD 測定では α 相の生成は認められなかった。

また、添加物 A を 10wt%含む試料の調製過程で、添加剤 B を加えると比表面積はさらに向上し、1200°C50h 空气中で焼成した試料において 112m²/g と極めて高い比表面積を示した。この値は、目標としていた比表面積を大幅に上回る結果である。

3-2 新規耐熱アルミナの調製法確立

添加物 A は比表面積向上に有効である反面、酸性酸化物であることから多量の使用は触媒性能、特に OSC や CO 吸着量の低下をもたらすことが明らかになった。そこで、アルミナの調製過程で耐熱性向上のために沈殿生成条件の検討や添加剤 B の使用等によって、より高い耐熱性を有するアルミナの調製方法を確立した。

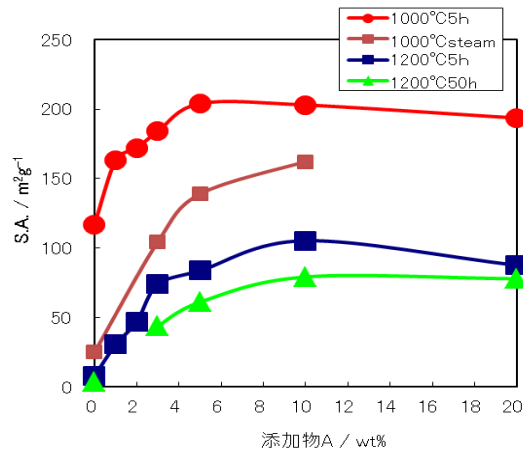


図 2-2-2-1 添加物によるアルミナの耐熱性向上

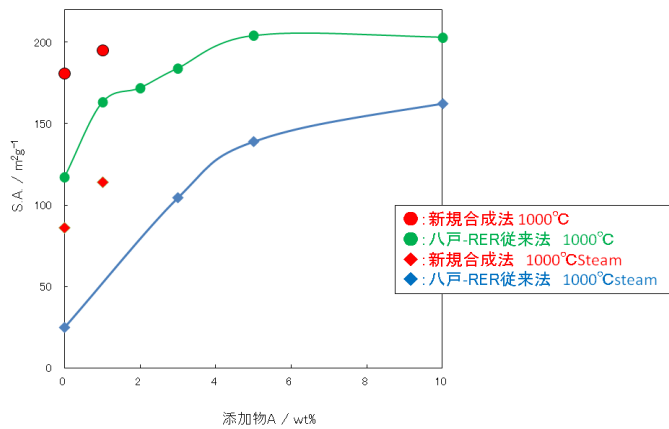


図 2-2-2-2 新規合成法による耐熱性の向上

従来の耐熱アルミナに比べて、触媒性能の低下をもたらす添加物 A の使用量を大幅に抑制、または使用せずに空气中、または 1000°C 20h のスチームエージングでも非常に高い耐熱性を示す新規な耐熱性アルミナの調製に成功した。(図 2-2-2-2 参照)

3-3 耐熱性 γ -アルミナ製造方法の最適化

ビーカーレベルの耐熱性アルミナの合成は数グラム/バッチ程度であるが、500g/バッチの大量合成においても高い耐熱性を示すことが確認できた。

3.4 耐熱性 γ -アルミナの工業化

ラボスケールの試作検討において、耐熱性 γ -アルミナの調製法はほぼ確立し、従来法に較べ少量の助触媒・助剤の添加で優れた耐熱性を付与できるようになった。一方、現状のラボ試作法では将来の工業化を想定すると、製造規模、製造コストとも既存アルミナ担体に較べ問題が多く、量産化可能な手法の適用や置き換え、大規模製造装置の適用を想定した製造条件の最適化の検討を行った。具体的には純度・不純物組成とコストを勘案した原料アルミナの選択、耐熱性向上を目的とした助触媒や助剤の添加方法の改良、結晶化方法の最適化、水洗/脱水工程のスケールアップ手法の検討、乾燥および焼成工程のスケールアップ手法の検討・技術確立、整粒法の最適化等の検討を実施し、実際に量産化可能な手法・装置を用いて数 Kg~50Kg 単位の小規模量産製造を行い、ラボ試作品との耐熱性の比較を行った。その結果、スケールアップ可能な手法で製造した耐熱性 γ -アルミナがラボ試作品と同等の耐熱性を有する事を確認した。

4 結言

耐熱アルミナの合成に関して、開発目標としていた 1200°C 50h 空气中焼成で 70m²/g を大幅に上回る 112m²/g の比表面積を有する耐熱アルミナの調製に成功した。また、添加物 A を用いたアルミナについて自動車触媒への適用を検討したところ、添加物 A による耐熱性向上と TWC 性能はトレードオフの関係にあることから、最適な添加量を決定した。さらに、添加物のより少ない条件で高い耐熱性を

有する担体の調製方法を見出した。

耐熱アルミナの製造法のスケールアップについて検討し、量産化可能な手法や装置を用いて耐熱性を維持しながら大規模製造が可能であることを確認した。

II セリア添加方法の改良による耐熱性および OSC 向上

1 緒言

基準触媒は Pd 担持アルミナ触媒と Rh 担持セリア触媒を物理混合し、スラリー化してハニカム担体にウォッシュコートすることにより作成している。前項の検討で、アルミナ担体については、従来の γ -アルミナに比べ、はるかの耐熱性に優れた耐熱性 γ -アルミナおよびその量産化手法の開発に成功している。その結果、1200°C、50Hr のエアーク処理と言う非常に苛酷な加速条件下においても結晶構造の α 化を防止し、100m²/g 以上の高表面積を維持できている。しかし、従来の様にアルミナとセリアを物理混合した場合、セリアのシンタリングはアルミナと関わりなく進行するため、耐熱性アルミナの高表面積維持効果をスポイルする結果となっていた。例えば標準セリア A はマイルドな加速試験条件である 1000°C、20Hr のエアーク処理でも表面積が 75m² から 2m² へと激減するため、耐熱性アルミナとの物理混合品ではセリアの表面積低下防止効果も OSC 機能の低下防止効果も不十分であった。そこで、セリアとアルミナとのインタラクションを増加し、セリアのシンタリング防止、OSC 機能の低下防止を目的としてセリアの添加方法の改良検討を実施した。

2 実験

2-1 共沈法による CeO₂-Al₂O₃ の調製

耐熱アルミナの調製方法を応用して CeO₂-Al₂O₃ の調製を行い、比表面積や OSC (触媒評価装置 BELCAT-B を使用) に及ぼす添加物 A の効果を検証した。

2-2 共沈法による CeO₂-ZrO₂-Al₂O₃ の調製と触媒化

耐熱アルミナの合成方法を応用して Pd-Rh/CeO₂-ZrO₂-Al₂O₃ の調製と比表面積、OSC、CO 吸着量について触媒評価装置 (BELCAT-B) を用いて評価した。

3 結果と考察

3-1 共沈 CeO₂-Al₂O₃ に対する添加物 A の効果

共沈法によって調製した CeO₂-Al₂O₃ の比表面積と OSC について評価した。アルミナの耐熱性向上に顕著な効果があった添加物 A の添加量と OSC、比表面積について検討したところ、添加剤量の増加と共に比表面積は向上する反面、OSC は低下する傾向が認められた。しかし、1wt%程度のごく少量の添加によって OSC と比表面積の向上が認められた。(図 2-2-2-3 参照)

また透過電顕による CeO₂/Al₂O₃ 共沈系試作触媒の貴金属担持状態の分析の結果、Rh、Pd が共に、セリアおよびアルミナ上に非選択に担持されていることが分かった。またアルミナ上ではセリア上に比べ貴金属のシンタリングが進行しやすいことも明らかになった。貴金属の選択担持手法 (Rh をセリア表面、Pd をアルミナ表面に選択的に担持) の開発により CeO₂/Al₂O₃ 共沈系触媒の TWC 性能を向上と貴金属の低減の両立が可能と思われる。

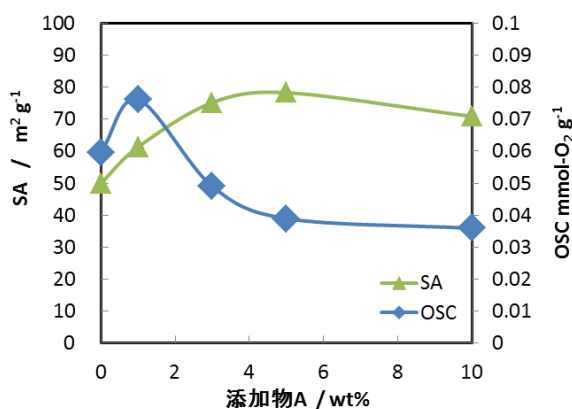


図 2-2-2-3 CeO₂/Al₂O₃ に対する添加物 A の効果

3-2 標準セリア A と耐熱アルミナを用いた触媒の評価

3-1 と同様に Rh-CeO₂ と Pd-Al₂O₃ を物理混合して比表面積、OSC、および CO 吸着量について、添加物 A の効果を検討した。その結果を図 2-2-2-4 に示すが、比表面積向上に添加物 A は有効である反面、

過剰の添加で OSC や CO 吸着量の低下がみられ、1wt%の添加が最も有効であることがわかった。したがって、添加物 A の添加量を抑制しながら高い比表面積を有する触媒担体の開発が必要である。

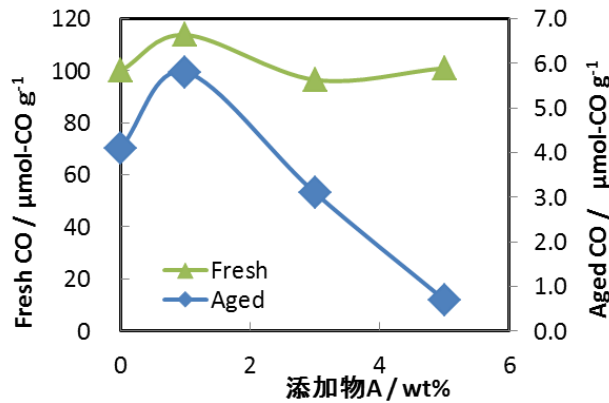


図 2-2-2-4 Rh/CeO₂-A+Pd/添加物 A-Al₂O₃ 触媒の CO 吸着量

3-2 耐熱アルミナ合成法を応用した Rh-Pd/CeO₂-ZrO₂-Al₂O₃ 触媒の評価

耐熱アルミナ合成法を CeO₂-ZrO₂ に応用した Rh-Pd/CeO₂-ZrO₂-Al₂O₃ 触媒について比表面積、OSC、および CO 吸着量の改良効果を検討した。その結果を図 2-2-2-5 に示すが、エージング後の OSC、SA は従来技術（基準触媒）の約 4 倍、同じくエージング後の CO 吸着量（貴金属表面積）は従来技術（基準触媒）の約 2 倍の数値を保持していることが分かった。

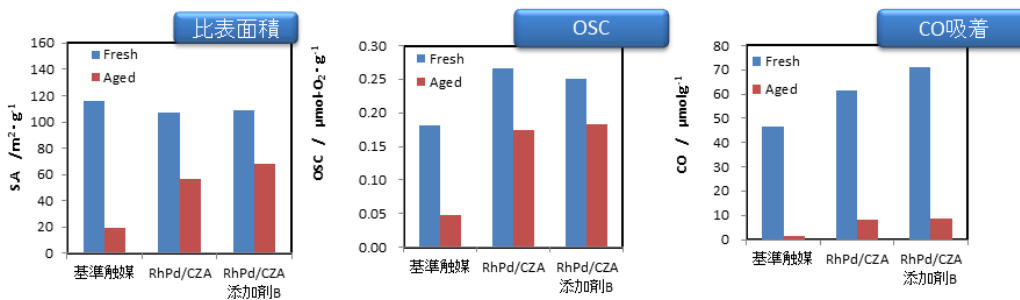
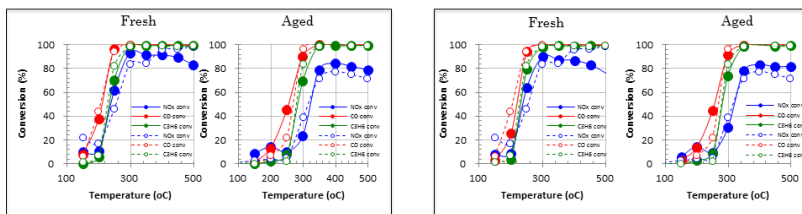


図 2-2-2-5 耐熱アルミナの合成方法を応用した Rh・Pd/CeO₂-ZrO₂-Al₂O₃ 触媒の性状

<試作触媒の TWC 性能評価結果>

以上述べてきたように、耐熱性 γ-アルミナあるいはその合成方法を自動車触媒に適用することで、触媒性能の支配因子である OSC、比表面積、CO 吸着量（貴金属表面積）を既存触媒に比べ、数倍以上に向上することができた。産総研基礎実験装置により試作触媒の三元触媒性能評価を行った結果、耐熱性アルミナの適用により、セリア 42%削減触媒で基準触媒と同等の性能を有する事および、セリアのみならず貴金属も削減できる可能性が明らかとなった。（図 2-2-2-6 参照）

耐熱性アルミナ適用によるセリア貴金属削減効果



耐熱性アルミナ + セリア混合方法の改良によるセリア削減触媒の TWC 結果 (その1)

セリア：アルミナ = 1：4 (共沈法)
 (1% Rh on セリア：計算上)
 (2.5% Pd on アルミナ：計算上)
 セリア40%削減、Rh 40%削減
 アルミナ20%増、Pd 20%増

耐熱性アルミナ + セリア混合方法の改良によるセリア削減触媒の TWC 結果 (その2)

セリア：ジルコニア：アルミナ = 1：1：4
 (1% Rh on セリア+ジルコニア)
 (2.5% Pd on アルミナ)
 セリア42%削減

図 2-2-2-6 耐熱性アルミナを適用した試作触媒の 3 元触媒性能評価結果

4 結言

耐熱アルミナの自動車触媒への適用性について検討し、添加物 A の過剰の添加は OSC 機能を低下させる場合があり、最適な領域があることが分かった。さらに ZrO₂ を複合化することでエージング後の OSC、SA は従来技術（基準触媒）の約 4 倍、同じくエージング後の CO 吸着量（貴金属表面積）は従来技術（基準触媒）の約 2 倍の数値を保持できる事が分かった。TWC 性能を評価した結果、セリア 42%削減触媒で基準触媒と同等の性能を有する事および、セリアのみならず貴金属も削減できる可能性が明らかとなった。

III 改良セリア、代替セリア、高機能アルミナの触媒化、ハニカム化

<概要>

当事業では、大学、産総研、企業等が OSC 機能の向上に着目した改良セリアの開発あるいはセリア代替化合物の開発を行っているが、OSC 評価や触媒性能評価のための触媒化やハニカム化については、基本的には一般に自動車触媒分野で用いられている既存触媒技術を用いて評価用サンプルを作成した。最終的には各研究機関から送られてきた改良セリア、代替セリア、高機能アルミナ合わせて 122 サンプルを触媒化し、産総研での TWC 評価にかけるとともに、小型ハニカム 20 サンプル、実車評価用大型ハニカム 11 サンプルを準備し、ホンダ、産総研のハニカム評価にかけた。また、性能比較用の基準触媒を設定するために、セリア担持およびアルミナ担持各種貴金属触媒計 68 種を準備し、産総研の TWC 評価に提供した。その結果、1.0wt%Rh/標準セリア+2.5wt%Pd/アルミナを基準触媒として選定した。

また、当社が他の用途用の触媒として見出した特殊なセリアが自動車用触媒として優れた特性を有していることが分かった。そこで、その特殊なセリアを改良型セリアとして位置づけ、自動車用触媒として Ph 担持法の最適化や Pd/アルミナ触媒との混合方法を検討、改良し、TWC 性能を調べた。その結果を図 2-2-2-7 に示すが、Fresh、Aged ともに、基準触媒よりも高性能であることが分かった。さらに 30%セリア担持量を削減した触媒を作成し、TWC 性能を調べたが、基準触媒と同等の性能を有していることが確認された。

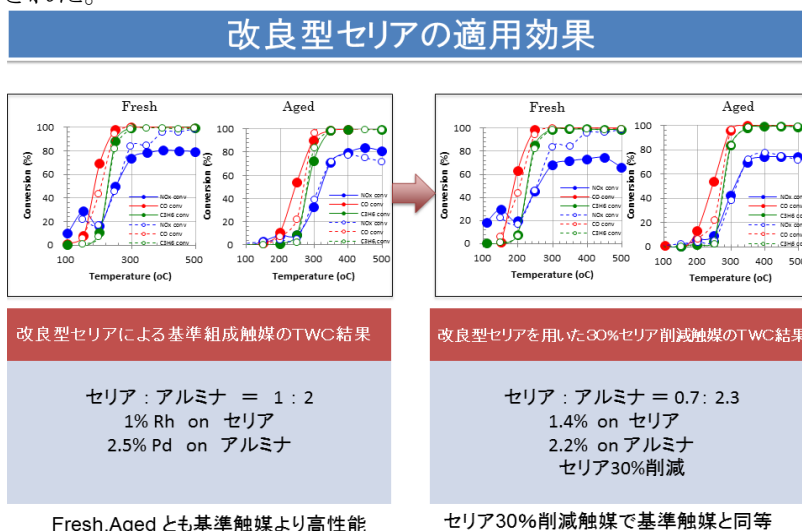


図 2-2-2-7 改良型セリアを用いた試作触媒の TWC 性能

研究開発項目②-2-3：セリアー金属界面の精密設計

(名古屋大学・薩摩研究室)

1 緒言

金属や金属酸化物とセリアのヘテロ界面においては、それらの相互作用により酸素吸蔵過程が促進される現象が見出されている。名古屋大学では、貴金属との界面近傍における金属-セリア相互作用を利用したセリアの酸素吸放出効率の向上をめざし、貴金属と離れた部分のターンオーバーが低い部分は削減あるいは代替可能範囲として、セリア使用量を半減するための方針を提示する。例えば、セ

リアの酸化還元温度域は、貴金属を担持することによりその大幅に低下する。具体的には、Pt/CeO₂ では 1000°Cでの焼成により 200°C以下の CO 酸化活性をほとんど示さなくなるのに対し、Rh/CeO₂ が高い CO 触媒活性を維持することを見いだした。EXAFS 解析により、Rh/CeO₂ 触媒上の Rh は、酸化状態においてイオン種 (Rh³⁺) として安定的に存在し、1000°Cでの熱負荷後も Rh の高分散状態が保持されていることを見出した。この事実は、セリアに適切な修飾を施すことで、その酸化還元サイクルの大幅な促進が可能であることを示している。

また、セリアの酸化還元過程を動作条件で観察するため、in-situ Raman 装置を開発し、すでに開発済みの in-situ UV-Vis 装置と併せて、セリアの酸化還元能詳細な解析を進める。下図に示すように Rh/CeO₂ 触媒における Ce⁴⁺→Ce³⁺の還元速度は Pt/CeO₂ 触媒の 30 倍であり、CeO₂ の還元速度向上が Rh/CeO₂ 触媒の活性向上因子であることが明らかである。本研究ではこれらの知見および測定手法を活かすことにより、セリアの性能向上と使用量削減を目指した。

2 実験

触媒調製：Rh(1.0wt%)/Metal/CeO₂-A は以下のように調製した。CeO₂ はプロジェクト標準試料 CeO₂-A(第一希元素)を用いた。Metal 源としては硝酸塩(Fe, Ni, Co, Cu, Mn)またはアセチルアセトン Ru を用い、含浸法にて調製した。Metal 源を含む水溶液(Fe, Ni, Co, Cu, Mn)または THT 溶液(Ru)に CeO₂ を入れ 30min 攪拌し、エバポレータを用いて、60°Cで、120 min 蒸発乾固した。固形物を乾燥機にいれ、80°C、一晚乾燥。この後、ろつぼにいれ、空气中、1000°C 1h 焼成した。Metal/CeO₂ 担体にさらに硝酸ロジウム水溶液を用いて乾燥過程までは上記と同様の含浸法で Rh を担持した。最終的に触媒は空气中、800°Cで 1 h 焼成した。

OSC 測定：主に CO/CO₂ アナライザーを備えた流通反応装置を用いて測定した。測定条件は以下の通りである。

Total flow rate = 100 mL /min; Catalyst weight = 3 mg

CO pulse [CO] = 1.0 % / He balance / for 5 min

O₂ pulse [O₂] = 0.5% / He balance / for 5 min

一部の試料は DG-DTA から求めた重量変化により OSC を見積もった。この場合還元剤は H₂ を用いた。条件は以下の通りである。

Total flow rate = 100 mL /min; Catalyst weight = 10 mg

H₂ pulse [CO] = 3 % / He balance / for 5 min

O₂ pulse [O₂] = 3% / He balance / for 5 min

In-situ Raman：In-situ Raman スペクトルは日本分光製 MP-330(励起光は 532 nm の半導体グリーンレーザー)に独自開発の in-situ 加熱拡散装置を接続して測定した。粉体試料はヒータ付きの in-situ 加熱拡散セルにガスフローセルに充填し、1.0 mm 厚、10 mm 径の石英窓でカバーした。焦点は×20 の対物レンズを用いて CCD カメラにてあわせた。分光器には 1800-groove mm⁻¹ のグレーティングおよび空冷 1024×256 ピクセルの CCD を用いて 89.28~1324.29 cm⁻¹ の範囲を分解能 1 cm⁻¹ にて後方散乱光を検出した。レーザー光への露出時間は 10 s を標準とした。

3 結果と考察

図 2-2-3-1 に各種金属をドーブしたセリアの OSC、OSC-r(800°C焼成、測定 400°C)を示す。基準の Rh/CeO₂ に比べて OSC、OSC-r が向上したのは Rh の分割担持、Ru、Ni を添加した場合であった。中でも Ni の添加は量を増やすほど OSC、OSC-r が向上し、さらなる添加量の増加に期待される。Ru も 1wt%以上の増加で OSC の向上が予想されたが、Ru 価格の観点からこれ以上の検討は控えることとした。

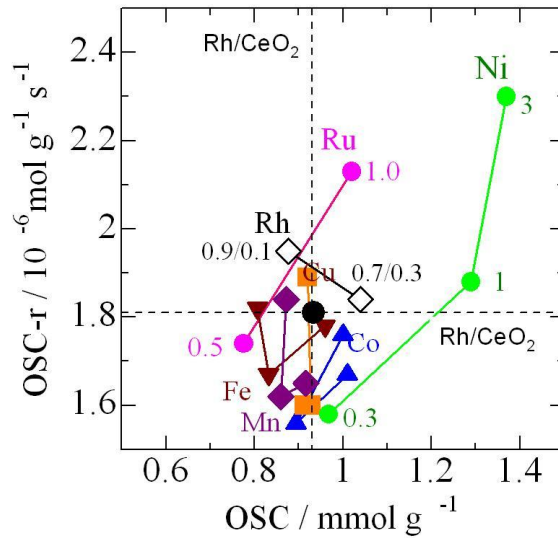


図 2-2-3-1 各種金属をドーピングしたセリアの OSC、OSC-r (800°C 焼成、測定 400°C)

図 2-2-3-1 で OSC の向上が見られた Rh/Ru/CeO₂ について産総研にて TWC 性能評価を行った。図 2-2-3-2 に結果を示す。Fresh, Aged 触媒共に基準の Rh/CeO₂ 触媒と同等の活性を示した。中でも Aged 触媒において、Rh/Ru/CeO₂ 触媒(実線)は基準の Rh/CeO₂ 触媒(破線)よりも明らかに高い NO_x 転化率を示した。

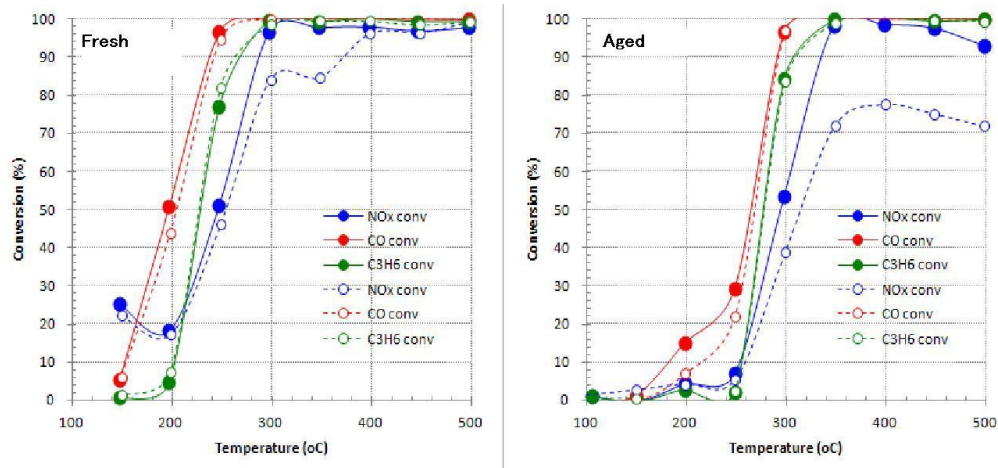


図 2-2-3-2 Rh (1.0wt%)/Ru (1.0wt%)/CeO₂-A の TWC 性能。破線は参照試料

図 2-2-3-3 に Ni 添加量をさらに 3wt%以上、最大 20%まで増加させたときの OSC、OSC-r を示す。OSC、OSC-r 共に Ni 増加量と共に向上し、OSC は 15wt%、OSC-r は 20wt%で最大値をとった。Ni 添加により OSC 量を最大 2.5 倍、速度を最大 3.5 倍まで向上させることに成功し、Pt 担持セリアに比べて酸素吸収および放出速度を 2 倍以上とするとした当初の目的を達成した。さらに Ni の添加が OSC 増加を引き起こす原因を調査した。

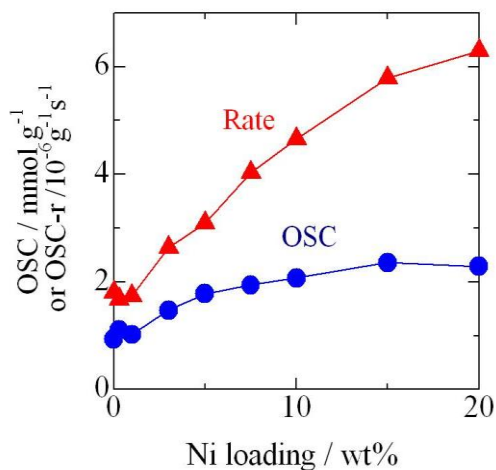


図 2-2-3-3 OSC、OSC-r に対する Ni ドープ量の効果 (800°C焼成、測定 500°C) .

図 2-2-3-4 にセリアの表面積に対する Ni ドープ量の効果を示す。Ni ドープ量に関わらず、かわかわらず表面積は 32~36 $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ を維持した。その他の Fe, Mn, Co 等の添加では表面積が 10 $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ 程度まで減少していたことからすれば、Ni ドープにかかわらず表面積が保たれる点は興味深い。

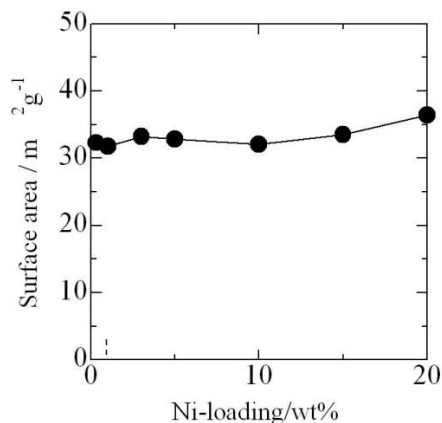


図 2-2-3-4 表面積に対する Ni ドープ量の効果

以上は 800°C焼成試料の結果であったが、1000 °C, 20 h, 乾燥空气中, 1h での耐久試験もあわせて実施した。図 2-2-3-5 にその結果を示す。図は Ni を添加しない試料の OSC を 1 とした時の相対量で示した。測定温度が高い 500, 400°C で Ni 添加効果が顕著に現れ、20wt% で OSC は 1.3~1.6 倍となった。しかしながら 300°C では Ni 添加の効果はほとんどみられなかった。

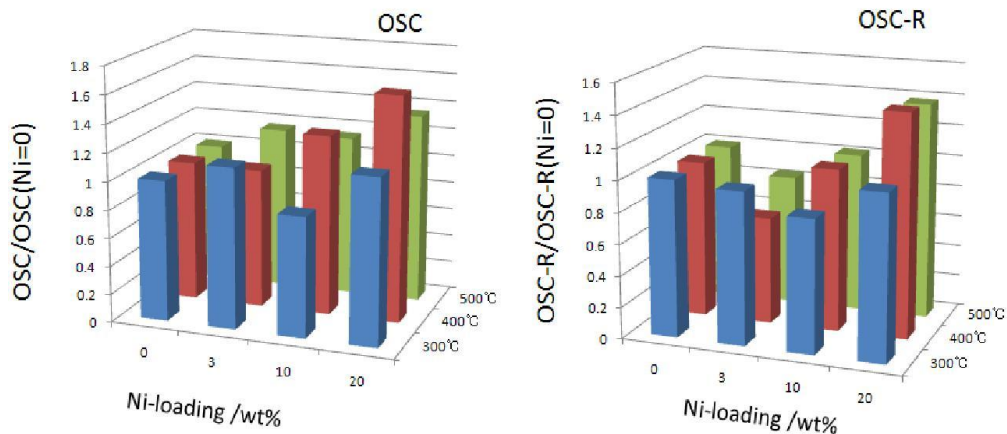


図 2-2-3-5 耐久後の Ni/CeO₂ における OSC、OSC-r の Ni 添加量、測定温度に対する効果

縦軸はNiフリー試料に対するOSC値の比。耐久条件は1000℃、20h、乾燥空气中）。

図2-2-3-6にはNi/CeO₂のXRDパターンを示す。何れの試料もCeO₂の回折線が明確に観察された。担持量5wt%以上でCeO₂以上のNi/CeO₂にはNiOの回折線が見られた。NiOのmonolayer理論Ni担持量は11.9wt%であり、5wt%からわずかに、10wt%から明確にNiOの微粒子が形成したのは妥当である。また、CeO₂の回折線も若干シフトしており、格子定数は5.420から5.414Åへと減少した。イオン半径はNi²⁺のほうがCe⁴⁺よりも小さく、Zr⁴⁺に代表されるCeO₂への金属イオンの固溶が確認された。すなわち、ドーパしたNiには(1)担持されたNiO、(2)CeO₂に固溶したNi²⁺の2つの形態がありことが示された。OCSの向上の原因がこのどちらにあるかを明らかにするため、NiO微粒子の形成しにくい共沈法で新たにNi-CeO₂を調整した。3wt%のNiドーパ量ではNiOの回折線は無視できるほどであったため、これをモデル触媒としてOSCを測定した。図2-2-3-7に含浸法と共沈法で調製したNi/CeO₂のOCS、OSC-rを比較した。共沈法で調製した触媒はOSCの量は含浸法触媒と同様に向上したが、共沈法触媒でOSC-rはほとんどNiをドーパしない触媒とほぼ同じ値であった。この結果から以下の点が提案できる。

- (1) NiO微粒子はOSC-r(速度)向上への寄与が著しい。
- (2) Ni²⁺固溶体はOSC(量)の向上に寄与する。

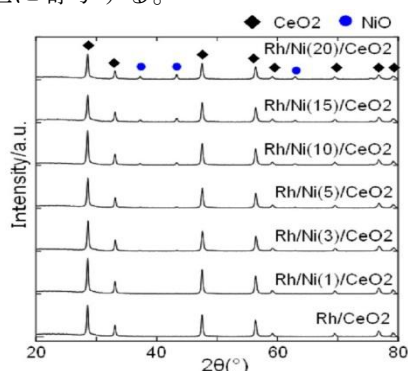


図2-2-3-6 Ni/CeO₂のXRDパターン

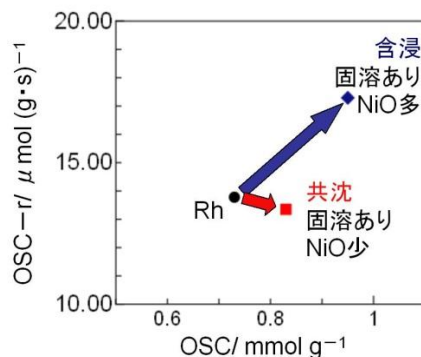


図2-2-3-7 含浸法と共沈法で調製したNi/CeO₂のOCS、OSC-rの比較

課題の2番目としてin-situ Raman分光によるセリアの酸素吸蔵放出挙動の速度解析を検討した。図2-2-3-8に本プロジェクトで購入した日本分光製ポータブルレーザーラマン分光光度計RMP-330を示す。写真中央がin-situセルであり、ガス流通下で加熱して、触媒の動作状態においてRamanスペクトルの経時変化を観察した。

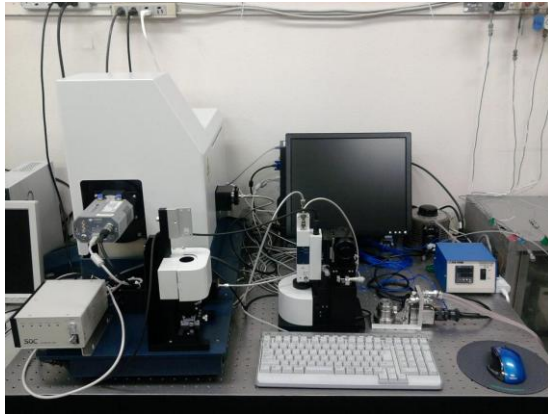


図 2-2-3-8. 日本分光製ポータブルレーザーラマン分光光度計 RMP-330.

図 2-2-3-9 に CeO₂-A の in-situ Raman スペクトルを示す。測定は 500°C で行った。赤いラインが 2%O₂/N₂ 流通下のスペクトルであり、258 cm⁻¹ に 2nd-order transverse acoustic mode, 460 cm⁻¹ に strong F_{2g} mode of CeO₂, 595 cm⁻¹ に defect-induced mode(帰属の根拠は例えば A. Wu, et al., Langmuir, 26 (2010) 16595) に帰属されるバンドが観察された。中でも 460 cm⁻¹ の F_{2g} mode は強く表れた。一方、CeO₂ の歪みを表す 595 cm⁻¹ の defect-induced mode はバックグラウンドに対して十分な強度が得られなかった。これはレーザー光原が 532 nm であったことによる。しかしながら還元後は F_{2g} mode のバンドが著しく減少し、このバンドの強度変化がセリアに比べて酸素吸蔵放出の尺度になることを示している。

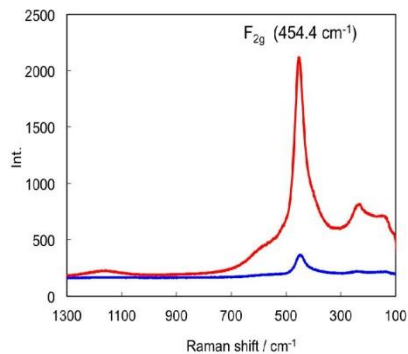


図 2-2-3-9 CeO₂-A + 2wt%Pd/Al₂O₃ の in-situ Raman スペクトル
赤：2%O₂/N₂、青：1%CO/He。測定温度 500°C。

この点を確認するため、in-situ UV-Vis と in-situ Raman におけるバンド強度の応答を比較した。UV-Vis では 600 nm に Ce³⁺-□(欠陥サイト) に基づくバンドが観察される。これを Raman の F_{2g} バンドと比較した。図 2-2-3-10 に結果を示す。CO による還元反応に対して、両者の時間変化はほぼ一致したことから、Raman の F_{2g} バンドの強度変化がセリアの酸素吸蔵放出過程のダイナミクス測定の指標になると判断した。ただし、細かい点ではただしすべての温度において Raman の方が応答が速い。これは観察している対象 (Raman は構造の対称性, UV-vis は欠陥サイト) の違いに由来するものと予想される。なお、細かい注意点として、セリアを Raman で測定する場合、CO を還元剤として用いると炭酸セリウムの散乱バンドが 450 nm 付近に重なることがあることがわかった。これは CO の酸化により生じた CO₂ の吸着によるものである。このため Raman によるダイナミクス測定では以降 水素を還元剤としてセリアの酸化還元挙動を比較した。

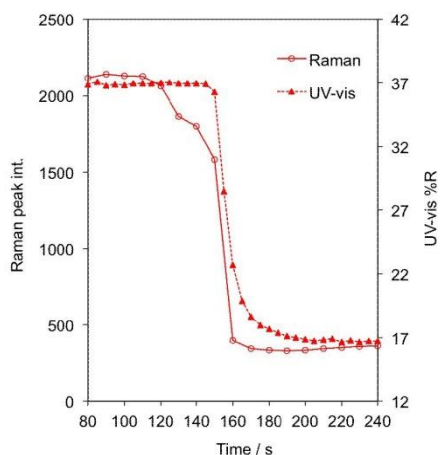


図 2-2-3-10 In-situ Raman と in-situ UV-vis における CeO₂ 欠陥由来のバンド強度変化の比較

Rh を一括担持 (Rh1) と分割担持 (Rh0.9, 0.1) の 100℃での H₂-O₂ パルス反応における酸化還元挙動を測定した。図 2-2-3-11 に結果を示す。H₂還元パルスによる F_{2g} バンド強度は減少するが、その速度には明らかな違いが見られ、分割担持 (Rh0.9, 0.1) 試料の方が明らかに速かった。ただし酸化過程の速度は両者それほど変わらない。In-situ Raman のバンド強度の時間変化から一時反応を過程して速度定数を出したところ、一括担持 (Rh1) では $1.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 、 $7.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ であり、セリア試料間での酸化還元速度の差を定量的に解析することが出来た。

in-situ Raman ではその他にも、Ru/CeO₂ における Ru-O-Ce bond の観察 (図 2-2-3-12)、町田グループにより開発された CeO₂@Fe₂O₃ 触媒における CeO₂, Fe₂O₃ の酸化還元挙動の個別分析 (図 2-2-3-13) にも用いた。ただし、Raman バンドが明確に出ない試料では解析が困難であり、適用範囲はそれほど広くないことも解った。

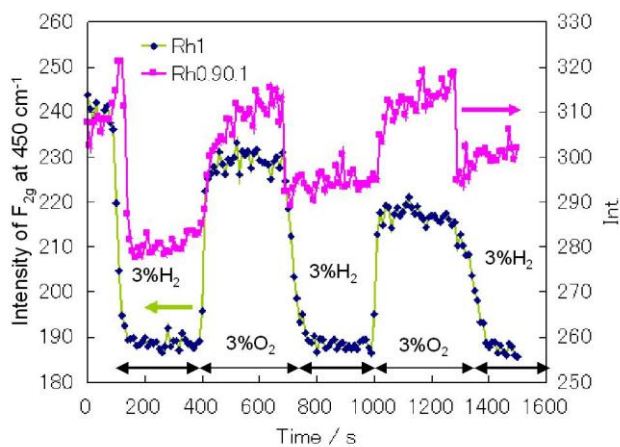


図 2-2-3-11 In-situ Raman における CeO₂ F_{2g} バンドの強度変化の比較

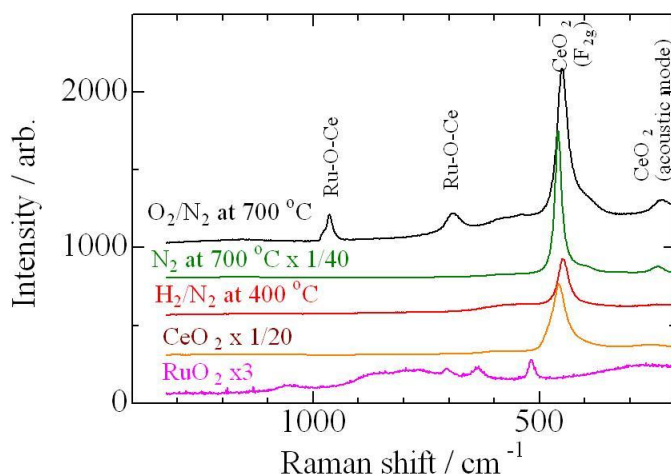


図 2-2-3-12 Ru/CeO₂ の in-situ Raman スペクトル

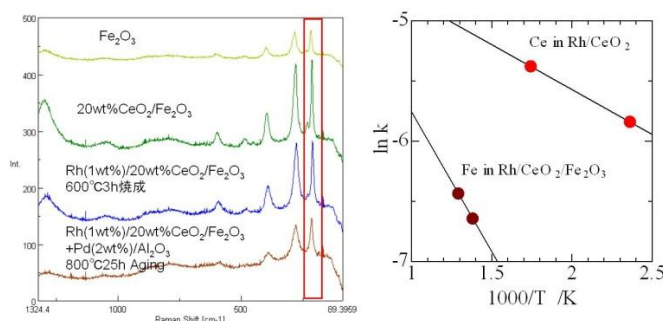


図 2-2-3-13 CeO₂@Fe₂O₃ の in-situ Raman スペクトルにおける F_{2g} バンドの強度変化

以上のように課題 2 では in-situ レーザーラマンを開発し、Rh 分離添加により表面での OSC 速度が 4.8 倍となったことを実証した。

4 結言

本研究では、(1)金属-セリア相互作用を利用した酸素吸放出速度の向上と、(2)In-situ レーザーラマンにより酸素吸放出速度の向上の実証を目的とした。Pt 担持セリアに比べて酸素吸収および放出速度を 2 倍以上とする数値目標に対して、Ni 添加により OSC の量を 2.5 倍、速度を 3.5 倍することに成功した。また、In-situ レーザーラマンによるセリアの酸化還元挙動ダイナミクス測定を開発し、Rh 分離添加による表面での OSC 速度向上を実証した。

研究開発項目②-2-4 :セリア-遷移金属酸化物複合化

(熊本大学・町田研究室)

1 緒言

自動車触媒におけるセリア(CeO₂)の作用は表面機能(触媒活性・貴金属安定化)とバルク機能(酸素吸放出)とに分けられる。このうち後者を他の遷移金属酸化物が担うことができれば、セリウム的大幅な削減が可能になる。本研究では、酸化鉄など遷移金属酸化物の表面に少量のセリアナノ粒子を高密度にグラフティングした複合粒子を開発することを目的とした。複合粒子の表面はセリアナノ粒子で被覆されるため触媒活性と貴金属安定化効果が得られ、粒子内部の遷移金属酸化物が吸放出可能な酸素の供給源となる。複合粒子の酸化還元機構、結晶構造、界面構造ならびに動的触媒作用を解析し、高性能化に不可欠な高速酸素移行を実現する界面設計法を確立することでセリウム削減を目指した。

2 実験

共沈法で合成した約 50 種類の遷移金属酸化物粉体(1000 °C焼成)に CeO₂ ゼル(一次粒子径 8 nm)を含浸後(CeO₂ 換算で酸化物に対して 20 wt%)、600 °Cで加熱して複合体(CeO₂/MO_x)を得た。同量の 2 wt% Pd/Al₂O₃ と物理混合し、10% H₂O/air 中 900°C×25h 熱処理した。キャラクタリゼーションには XPS、XRD、TEM、XAFS などを用いた。酸素吸蔵量(OSC)および酸素放出速度(rR)は、供

給ガスを 1.0 % CO/He と 0.5 % O₂/He との間で切替えた際のガス濃度変化(CO-O₂ サイクル法)および 1.4% H₂/He と 0.7% O₂/He との間で切替えた際の重量変化(H₂-O₂ サイクル法)で測定した。OSC は供給ガスを CO から O₂ に切り換えた際の O₂ 吸蔵量から、rR は O₂ から CO に切り換えた時に生成する CO₂ のピーク強度から求めた。

3 結果と考察

図 2-2-4-1 の TEM 写真に示すように、熱処理後の複合体 CeO₂/Fe₂O₃ は数百 nm の Fe₂O₃ 粒子の表面に多数の数十 nm の CeO₂ 粒子が密着性の高い界面を形成して結合したグラフティング構造を有する。XPS より求めた表面の Ce 濃度(Ce/(Ce+Fe))=30~40%であった。乾燥した CeO₂ ゼル粒子のみを熱処理すると 100nm 以上にまで粒成長したので、グラフティングによって CeO₂ の粒成長は抑制されると言える。EXAFS より CeO₂/Fe₂O₃ 界面では Ce-O-Fe のアンカー種が形成することを確認した。このアンカー効果によって、CeO₂ の粒子成長が著しく抑制される結果、熱的に安定な複合体粒子が得られるものと考えられる。また、他の CeO₂/MO_x についてもほぼ同様の構造をもつ複合粒子が生成した。

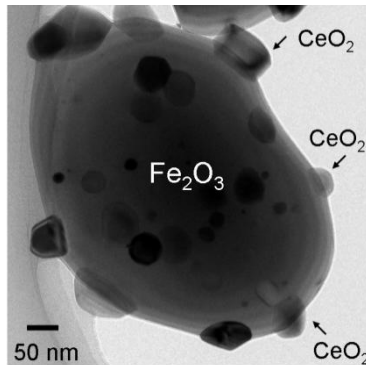


図 2-2-4-1 グラフティング構造を有する 20 wt% CeO₂/Fe₂O₃ の TEM 写真。900°C×25 h 熱処理後。

調製した全ての CeO₂/MO_x について、2 wt% Pd/Al₂O₃ との物理混合および 900°C×25 h の熱処理後、CO-O₂ サイクル法によって OSC および rR を測定した。このうち、OSC、rR とともに CeO₂ 単独を上回る性能を示した候補物質(MnFeO_x?, CoFeO_x および LaSrFeO_x)について図 2-2-4-2 に比較して示す。これら候補物質は CeO₂ を 1/5 以下しか含まないが、CeO₂ に比較して 2~8 倍上回る OSC を示した(300~500°C)。また、rR も CeO₂ と同等以上の値を示しており、表面反応性も十分高い。いずれも Fe を含む複合酸化物であるが、CeO₂/Fe₂O₃ と比較して OSC および rR が著しく向上している。これは Fe 酸化物の複合化が酸素放出の活性化エネルギーを低下させる効果を有するためである。CO-O₂ サイクル法と H₂-O₂ サイクル法とで評価した性能の序列は対応するが、後者では、M=Cu、Co、Ni など金属状態まで還元され易い元素を含む系で rR が過大評価される傾向が認められた。Fe₂O₃ でも Fe が H₂ によって金属状態にまで還元されるが、MnFe₂O_x では金属状態まで還元されにくくなり、安定な酸化還元が繰り返された。MnFe₂O_x は熱処理に伴う OSC およびの rR の低下はほとんど認められず、高い熱安定性を有する。

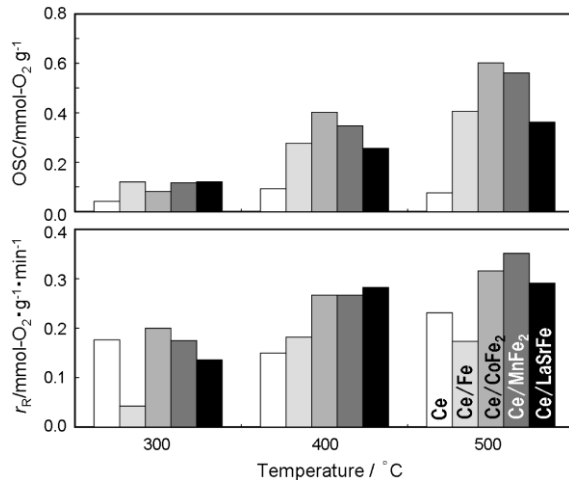


図 2-2-4-2 CO-O₂ サイクルで求めた 20 wt% CeO₂/MO_x の OSC および rR。900°C×25 h 熱処理後。

次に Mn₂O₃-Fe₂O₃ 系の最適組成比について検討した。図 2-2-4-3 に Mn₂O₃-Fe₂O₃ 系の格子定

数、OSC および rR の組成依存性を示す。Mn モル分率が 0.3 以上において Mn₂O₃ 型構造が XRD によって確認された。0.3 以下では Fe₂O₃ のピークが認められ、Mn₂O₃ との混合物となる。図 2-2-4-3a に示すように、Mn₂O₃ 型構造の格子定数が Mn モル分率の増加とともに単調に増加することから、Mn₂O₃ に Fe₂O₃ が固溶することが分かる。CeO₂ を含まない Mn₂O₃-Fe₂O₃ では OSC および rR は Mn モル分率 0.4 で最大値を示した(b)。一方、CeO₂ との複合化による OSC の変化は小さいが、rR はより顕著に向上し、等モル比に近い固溶体を形成する領域が最適組成である(c)。XPS、XAFS 等を用いて上記物質の酸化還元挙動を調べたところ、酸素放出は遷移金属酸化物の還元起因しており、CeO₂ はこの酸素放出過程の活性化エネルギーを低下させる効果を示す。CeO₂/Mn₂O₃-Fe₂O₃ 系を用いて CeO₂ 担持量の影響を調べたところ、300℃における OSC は 10~15 wt% で最大を示すのに対して、rR は担持量の増加とともに単調に増加し、20 wt% 以上ではほぼ一定に達した。このため最適な CeO₂ 含有量は 20 wt% と定めた。

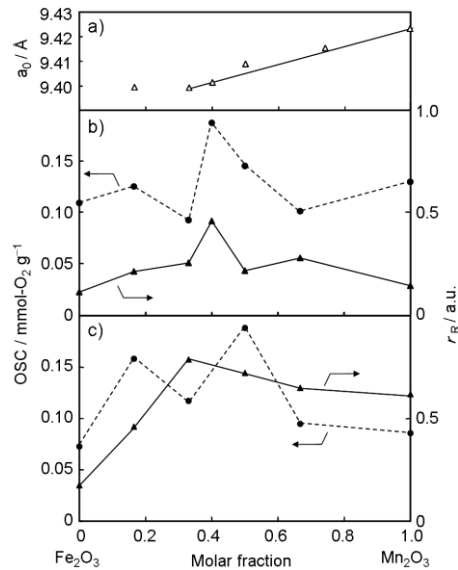


図 2-2-4-3 Mn₂O₃-Fe₂O₃ の (a) 格子定数, (b) OSC および rR, (c) 20 wt% CeO₂/Mn₂O₃-Fe₂O₃ の OSC および rR (300 °C).

熱処理した触媒について、CO-NO-C₃H₆-O₂ 系反応活性の空燃比依存性を測定した結果、CeO₂ と同様に酸素不足(リッチ)領域での NO、HC および CO の浄化率に改善が認められた。本効果は NO > CO > C₃H₆ の順で顕著であった。CeO₂/CoFe₂O_x は rich 領域の NO 浄化率が特に高い。さらに、A/F=14.2 および 15.0 の混合ガスを切り替えながら供給して空燃比緩衝能力を調べた(図 2-2-4-4)。候補物質は、CeO₂ に比べて 5 倍以上大きい OSC と CeO₂ と同等以上の酸素放出速度を示すことにより、顕著な緩衝作用を示すことが実証された。Mn₂O₃-Fe₂O₃ 系を第一候補物質として担持 Rh 触媒 (1wt%Rh) を調製し、二倍量の 2wt%Pd/Al₂O₃ と混合後、三元触媒(TWC)模擬ガス条件における活性試験を 200~500℃一定温度で実施した。各反応温度における転化率の定常値を基準触媒(Rh/CeO₂) と比較して図 2-2-4-5 に示す。

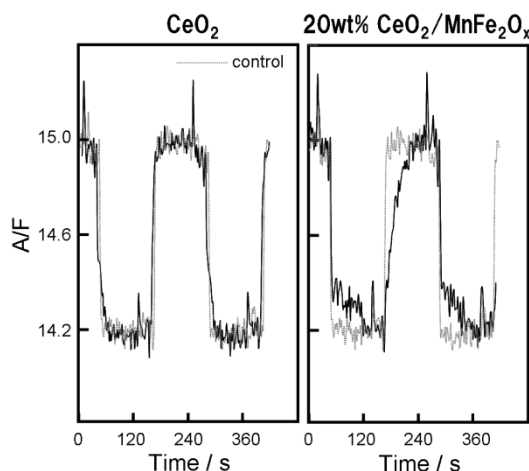


図 2-2-4-4 空燃比(A/F)振動に対する緩衝効果。A/F=15.0⇔14.2、120 s で切替、500℃。

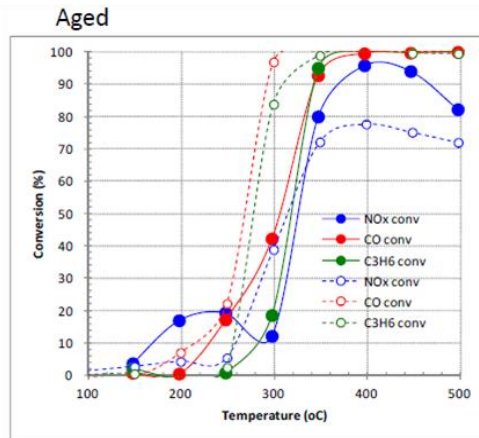


図 2-2-4-5 1wt% Rh/20 wt% CeO₂/Mn₂O₃-Fe₂O₃ の TWC 活性試験結果. 2wt% Pd/Al₂O₃ と 2:1 で混合, 1000°C × 20h, 10%H₂O/air 熱処理後. 点線は基準触媒 (CeO₂).

4 結言

約 50 種類の遷移金属酸化物粒子の表面に CeO₂ ナノ粒子をグラフティングした複合粒子について、OSC および酸素放出初速度を調べた結果、Ce 使用量を 1/5 以下にした上で、CeO₂ に比べて 5 倍以上大きい OSC を示す数種の候補物質を見出した。ガソリン自動車を模擬した空燃比変動条件において候補物質の空燃比緩衝能力および触媒性能を実証した。

研究開発項目②-3-1：非セリア系材料開発

(東北大学・阿尻研究室)

1 緒言

当プロジェクトでは、東北大学阿尻研究室は非セリア系材料開発グループであるが、これまでの研究実績を踏まえてセリアの形状制御による (100) 高活性面露出セリアの製法検討・大量合成して評価に供することになった。

非セリア系材料開発は、豊田中央研究所によるシリカ・鉄系触媒の知見 (特開 2000-290018) を参考にして、超臨界法による新たなナノスケールシリカ・鉄系触媒の製法検討・大量合成を行って評価に供する。加えて実用途雰囲気、1000°C に耐えられる材料としてシリカと同系統のジルコニア・鉄系触媒製法検討・大量合成を行い、評価に供した。

2 実験

AKICO 製バッチ式超臨界反応装置 (図 2-3-1-1) を用いて、超臨界水熱合成法による金属ナノ粒子の合成を行なった。pH 条件、濃度条件などを変更した実験を行い合成条件の最適化を行なった。表 2-3-1-1 に合成条件を示した。バッチ式装置により見出した最適条件をもとに MOMI 超 mini (図 2-3-1-2) を用いてナノ粒子の流通式超臨界水熱合成を行なった。流通式連続合成により高い生産性でナノ粒子を生成できることを実証した。ナノ粒子の二次凝集による表面積の低下を防ぐ目的で乾燥法の検討を行なった。合成後のナノ粒子に対して真空乾燥、凍結乾燥、超臨界二酸化炭素乾燥を行いそれぞれのサンプルの OSC 活性の変化を調べた。得られた最適条件によって (株) アイテックに評価サンプルの大量試作 (1kg) を委託し合成した。

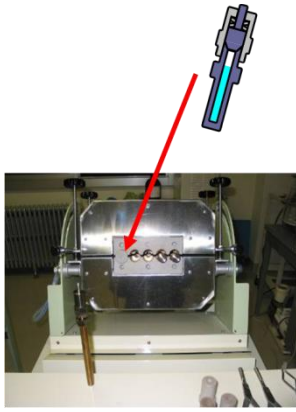
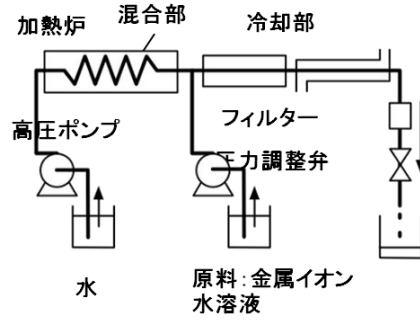


図 2-3-1-1 AKICO 製バッチ式超臨界反応装置



図 2-3-1-2 MOMI 超 mini



	合成法	乾燥方法	pH	反応温度(°C)	反応時間	
シリカ	SampleA	バッチ	凍結	7	400	10分
	SampleB	バッチ	凍結	7	400	10分
	SampleC	バッチ	凍結	10	400	10分
	SampleD	バッチ	60°C真空	9	400	10分
	SampleE	流通	凍結	7	400	1秒
	SampleF	流通	60°C真空	7	400	1秒
ジルコニア	SampleG	バッチ	凍結	7	400	10分
	SampleH	バッチ	凍結	7	400	10分
	SampleI	流通	凍結	7	400	1秒
	SampleJ	流通	凍結	7	400	1秒

表 2-3-1-1 ナノ粒子合成条件

3 結果と考察

3-1. 超臨界法による Ceria 系活性面制御材料開発

3-1-1. 露出面(100)と(111)の OSC 比較

図 2-3-1-3 に表面有機修飾技術を用いて(100)面を露出させた CeO₂ ナノ粒子と、非修飾(111)面露出の CeO₂ ナノ粒子の TEM 写真、及びそれぞれの OSC データを示す。それぞれ立方体および八面体のナノ結晶である。予想通り(100)CeO₂の方が活性は高いが、基準触媒に比べやや OSC 活性が劣る。

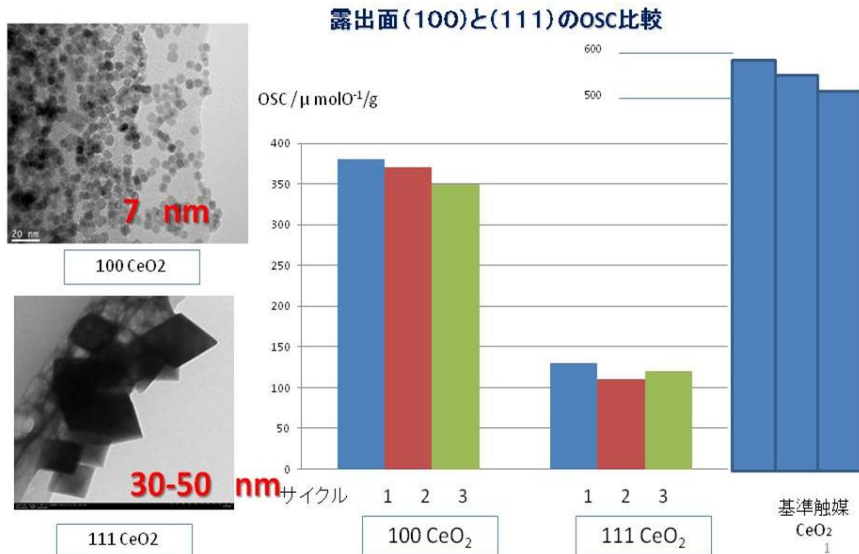


図 2-3-1-3 超臨界法によるセリアナノ粒子活性面露出制御材料

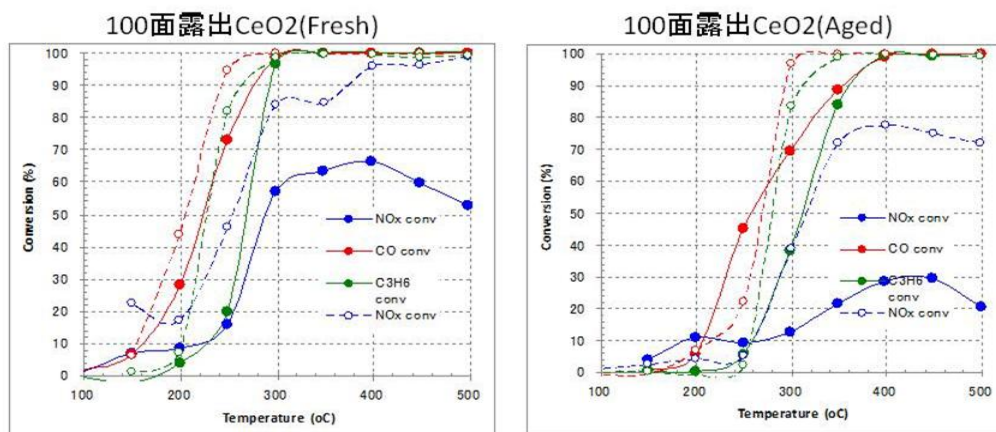
3-1-2. セリア系触媒ハニカム活性評価

図 2-3-1-4 に、(株) アイテック社に委託して大量合成した 100 面露出 CeO₂ を使って作成したハニカム触媒の活性試験データを示す。やはり基準触媒に比べ活性が低かった。

100 面露出 CeO₂ は低温領域での OSC が高いという知見が得られていたので高活性を期待したが、400 度以上で結晶構造が崩れて活性が低下したと考えられる。

・ ハニカム成型触媒活性評価

- ・ 100面露出CeO₂と基準触媒の比較。
- ・ 基準触媒より触媒活性は低い。



白抜き-点線は基準触媒活性

図 2-3-1-4 セリア系触媒ハニカム活性評価

3-2. 非セリア系材料開発

3-2-1. 非セリア系ナノ粒子の OSC 比較

図 2-3-1-5 にシリカ・鉄複合ナノ粒子、ジルコニア・鉄複合ナノ粒子の TEM 写真とそれぞれの OSC データを示す。鉄系ナノ粒子は基準セリアよりも高い OSC 値を示した。

既に出願されている豊田中央研究所のシリカ・鉄材料（粉砕法）（特許：特開 2000-290018）と比較して超臨界ナノ粒子化することにより高い OSC 値を示した。また合成したナノ粒子の分散性をよくするために改良した乾燥法、即ち超臨界乾燥法が、より高い OSC 値を示す結果が得られた。

3-2-2. シリカ・鉄系触媒ハニカム活性評価

図 2-3-1-6 に、シリカ・鉄系ナノ粒子を委託して大量合成した触媒のハニカム活性評価データを示す。基準触媒に比べ、高温部でシリカ・鉄系触媒の活性低下が著しい。これはシリカでは高温部で触媒としての耐熱性が低いためと考えられる。

シリカ・鉄及びジルコニア・鉄ナノ粒子触媒。乾燥法による性能向上の検討。

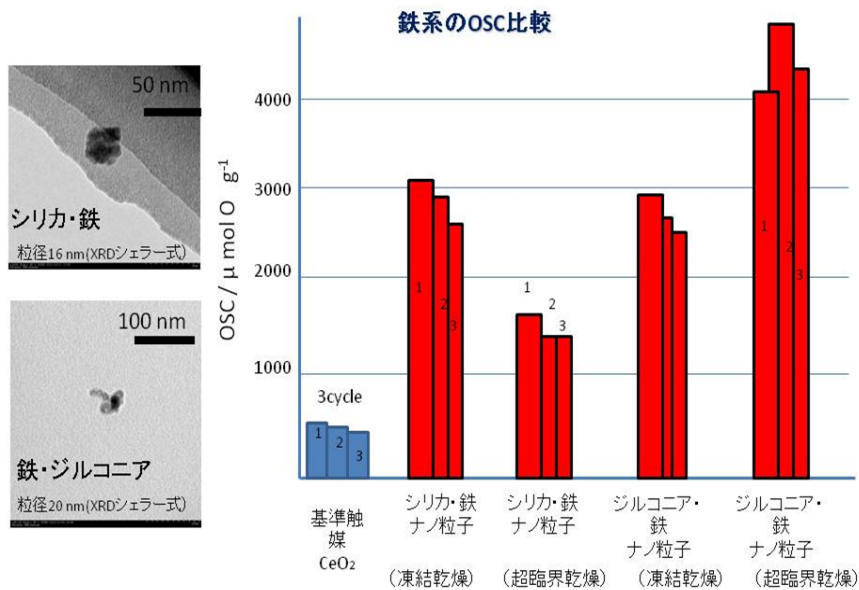
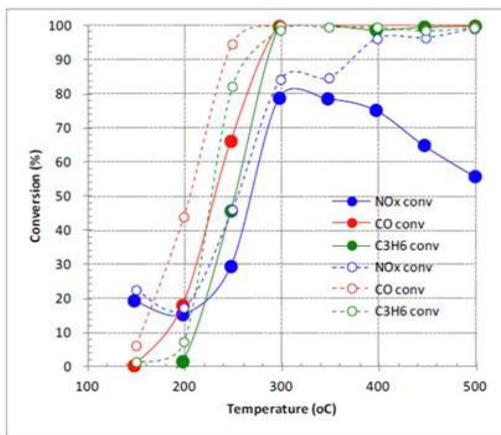


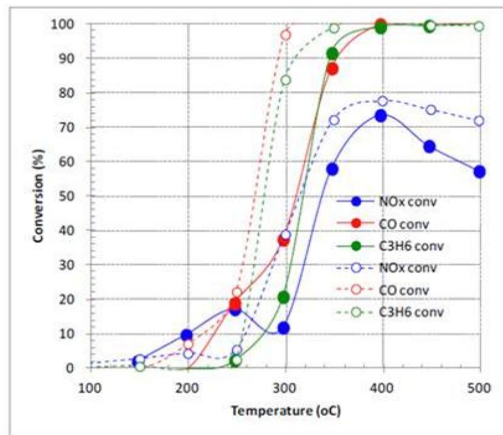
図 2-3-1-5 超臨界法による非セリア系触媒

- ・ シリカ・鉄ナノ粒子ハニカム触媒と基準触媒の比較。
- ・ シリカは耐熱性が低いため高温での活性低下が著しい。

シリカ・鉄触媒(Fresh)



シリカ・鉄触媒(Aged)



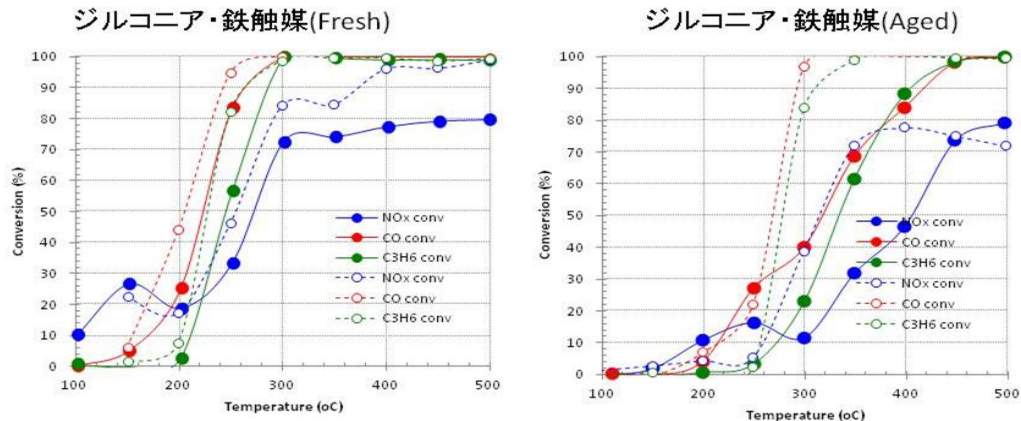
* 塗りつぶし-実線は鉄系触媒活性
白抜き-点線は基準触媒活性

図 2-3-1-6 シリカ・鉄触媒ハニカム活性評価

3-2-3. ジルコニア・鉄系触媒ハニカム活性評価

図 2-3-1-7 に、ジルコニア・鉄系ナノ粒子によるハニカム触媒評価データを示す。これはシリカ系は耐熱性に問題があることから、その代替えとしてジルコニア系を選んだ。また乾燥法も超臨界乾燥により分散性を改良したサンプルである。フレッシュサンプルでは NOx Conversion に低下が見られるが、エージングサンプルでは、差異が小さい。更に粒径制御、計上制御技術などによる高活性化、第三成分添加による耐熱性改良等を検討したい。

- ジルコニア・鉄ナノ粒子ハニカム触媒と基準触媒の比較。
- 超臨界乾燥法高分散耐熱性ナノ粒子で基準触媒とほぼ同等の性能(Aged)



* 塗りつぶし-実線は鉄系触媒活性
白抜き-点線は基準触媒活性

図 2-3-1-7 ジルコニア・鉄触媒ハニカム活性評価

4 結言

100 面露出 CeO₂ は基準触媒に比べ活性の向上が図れなかった。超臨界ナノ粒子セリアによる触媒機能は、高温雰囲気下で結晶構造が崩れるためではないかと推定している。

一方、代替材料として開発した鉄系触媒、即ちシリカ・鉄及びジルコニア・鉄は基準触媒に比べ高い OSC 能を有するが、シリカ・鉄は耐熱性に劣るため、ハニカム活性評価では高温域で活性低下が著しいが、耐熱性を考えて採用したジルコニア・鉄はハニカム活性評価試験ではほぼ基準触媒と同等の結果を得ており、代替材料として充分期待できる。

ジルコニア・鉄系材料については、超臨界法による粒径制御・形状制御による高活性化、第 3 成分付与など今後さらなる高活性化の検討を進めたい。またプロセス開発も現在の 10T/Y の実用化装置を起点に、さらなる大型化と今回開発し、大量試作に取り入れた超臨界乾燥プロセスの実用化も進めたい。

研究開発項目②-3-2 : 非セリア系耐熱性触媒の開発

(北海道大学・清水研究室)

1 緒言

従来の自動車触媒研究では、酸化セリウムは酸素吸蔵用の成分として検討されてきたが、最近、酸化セリウムは高温での酸化・還元雰囲気変動下での金属粒子成長の抑制にも有効な成分であることが実証された。本研究では、セリアの有する貴金属シンタリング抑制能を安価で資源量の豊富な材料で代替した高耐熱性触媒の開発を目的として、銀アルミナ系触媒の耐シンタリング性を検討したところ、自己再生能を有する Ag アルミナ系触媒を見いだした。

非セリア系 OSC 材の開発には①セリアの熱劣化挙動の解明、②非セリア系およびセリア系材料の酸素放出挙動の速度論的理解が不可欠である。本研究では、他グループとの連携研究のとして、上記①②についての検討も行った。

2 実験

Al₂O₃ はベーマイトを 600°C で焼成して調製した。La-Al₂O₃ は市販品を用いた。触媒は硝酸銀溶液を用いた含浸法で調製した。モデル反応は混合ガス (0.4 % CO/10%O₂/He) を触媒(0.03 g)に総流量 100 mL/min で流通して行った(SV= 80,000 h⁻¹)。XAFS は SPring-8, BL-01B1 にて測定した。HAADF-STEM は HD-2300S (Hitachi)にて測定した。

基準セリアの TEM 観察は、JEM-2100F, JEOL (200 kV)または超高压電研 JEM-ARM-1300, JEOL (1250 kV)にて行った。H₂-TPR は、BEL-Cat (日本ベル製)を用いて、5%H₂/Ar 流通(20mL/min)下、昇温速度 10K/min で昇温時の水素消費速度を温度に対して測定した。

3 結果と考察

1000°C での還元・酸化エージング後の条件で種々の担時触媒による CO 浄化性能評価(酸素過剰条

件)を行った。1000°C 焼成(d r y条件)後、銀アルミナ触媒が白金セリア、パラジウムセリア系触媒に比べて2倍以上のCO浄化能を示した。

種々のアルミナに銀を担持した触媒に対して、1000°C、水蒸気 10%、20h 焼成処理を行い、触媒活性を比較したところ、La ドープアルミナ担持銀触媒(Ag/La-Al2O3)が最も高い活性を示した。XRD、X線吸収分光により 1000°Cエージング処理後も活性金属(銀)がシンタリングすることなく、La-Al2O3担体に高分散していることを確認した。900°C水素還元後いったん凝集したAgが1000°C再酸化により再分散することで活性が完全に回復する現象(自己再生能)も見いだした(図2-3-2-1)。以上の結果は、セリアの有する活性金属種を高温でも高分散安定化する機能(シンタリング抑制機能)をセリアフリー担体材料(アルミナ)担体で代替可能であることを示す。

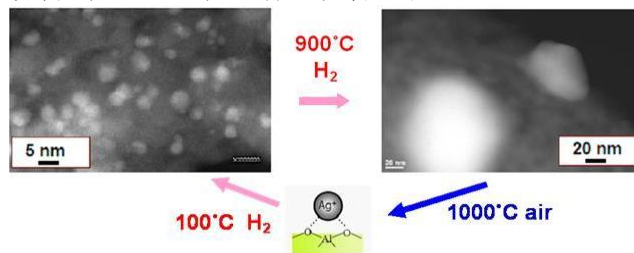


図2-3-2-1 Agアルミナ触媒の自己再生能

次に、三元触媒に近いストイキ条件でCO酸化を行い、Ag/La-Al2O3触媒がPtセリアと同等のCO浄化性能を有することを明らかにした。Ag/La-Al2O3によるCO浄化速度が酸素分圧に対して0.2次の依存性を示すことが分かり、酸素濃度が低い三元触媒条件でもCO浄化能を示す可能性が示された。

産総研、難波・小淵グループに三元触媒模擬条件での特性評価を依頼した。1000°C、水蒸気 10%、20h 焼成処理前後ともに、Ag/La-Al2O3の浄化能は基準触媒(Pd/Al2O3+Rh/CeO2)に比べて極めて低いことがわかった(図2-3-2-2)。ラボでのCO浄化(共存ガスフリー条件)ではエージングによる活性低下はほとんど見られなかったが、高濃度のCO2、水等のガスが共存する実ガスではエージング後に浄化能が半分程度に低下することがわかった。

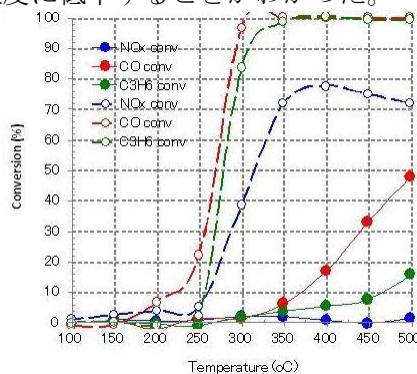


図2-3-2-2 Ag/La-Al2O3触媒(エージング後)のTWC特性(点線は基準触媒)

開発したAg/La-Al2O3は高い耐シンタリング性能と自己再生機能をもつ非セリア材料であり、セリアを代替する有望な素材であるが、実用化には実ガス条件(高濃度のCO2、水等のガスが共存)でのCO、NOx、炭化水素を浄化能の大幅な改善が必須である。そのためには、他グループとの共同により、A. 共存ガス阻害作用の分子論的理解と阻害抑制の指針構築、B. アルミナ表面の改質、C. Ag粒子径・担持位置の規定に関する以下の検討が必要である。

A. 複数の吸着サイトと反応素過程から成る総括反応のなかで、どの共存阻害分子がどのサイトとどのように相互作用するのか、どの素過程を阻害するのかを明確化するために、量子化学シミュレーションが必要となる。In-situ分光検討と併せて、阻害機構が明確化されれば、阻害抑制のための表面改質が可能となる。阻害分子の吸着エネルギーが最少となるようなAgとアルミナ表面の位置関係や添加分子の種類を計算により推定し、理論に基づいた触媒調製の改善やドーパント候補の絞り込みが可能となる。

B. 結晶成長方向を規定することにより露出面を制御し、水やCO2の阻害を抑制させる。

C. 含浸法ではAg粒子径に分布があり、アルミナ表面上の担持位置も規定されない。量子化学シミュレーションにより設計された最適構造の実現のため、液相還元担持、マイクロ波調製、超臨界

担持を検討する必要がある。

次に、①セリアの熱劣化挙動の解明、②非セリア系およびセリア系材料の酸素放出挙動、表面構造解析を行い、以下の成果を得た。

①基準セリアの加熱・焼結過程を TEM により観察した (図 2-3-2-3)。未処理品は CeO_2 ナノ結晶の集合体であり、結晶周辺部には配位不飽和サイトを有する。Dry 条件での焼成 (800°C 、 1000°C) により結晶は成長するが、主に (110) 面を露出した多面体構造は維持される。加湿下での 1000°C 、20h 処理により粒子径の増大、形態変化 (多角形からジャガイモ型に変化) が起こる。TPR との相関から、ナノ結晶の配位不飽和サイトが低温での反応性に関係することが示唆される。本知見と改良型セリアの構造解析、量子化学シミュレーションの劣化機構モデルを併せて、高温加湿条件に曝されても OSC 能の低下が少ないセリアの設計指針が構築されれば、実触媒でのセリア削減につながる。

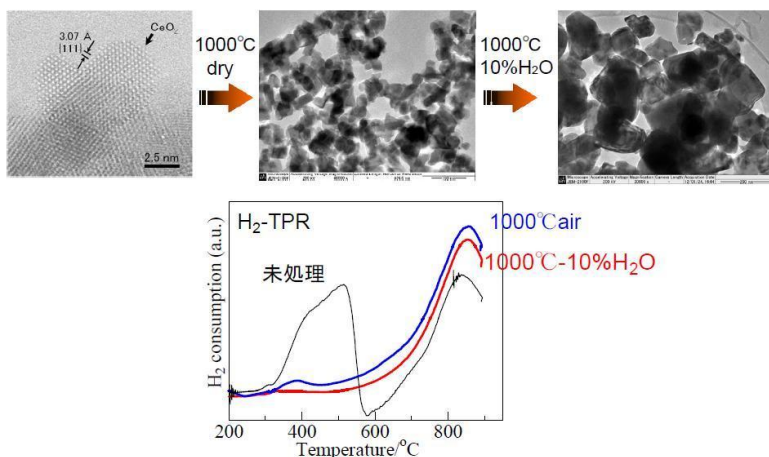


図 2-3-2-3 基準セリア A の形態、還元性に対する熱、水熱処理の影響

②-1 昇温還元 (H₂-TPR) によりドーパセリア材料 (東北大、小俣研)、 CeSnO 材料 (東北大、佐藤研) の OSC 能を評価した (図 2-3-2-4)。本試験により、迅速かつ定量的な OSC 能の評価が可能となり、セリアフリー・セリア低減 OSC 材料である Mn-Ca・Mn-Ce-Ca 材料 (東北大、小俣研) の開発につながった。

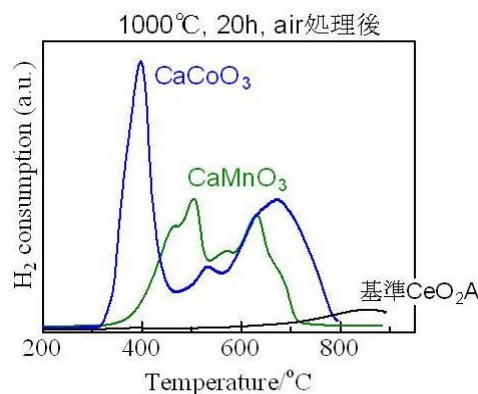


図 2-3-2-4 Co, Mn 系触媒 (エージング後) の H₂-TPR

②-2 X 線吸収分光 (XAFS) により CeSnO 材料 (東北大、佐藤研) の Sn の局所構造、価数を評価した。本成果により、X 線回折法では評価が困難な複合酸化物材料の構造推定に XAFS が有効な手段であることが示された。ドーパセリア、セリア代替複合酸化物に対して有効な構造解析法を与えた。

②-3 昇温還元 (TPR) により町田研試料 WC-04、及びその担体、小俣研試料 WC-06 及びその担体の OSC 能を評価した (図 2-3-2-5)。昇温速度を変化させた試験により、迅速かつ定量的な OSC 能の評価が可能となった。なお、本測定の詳細は報告書③項を参照のこと。

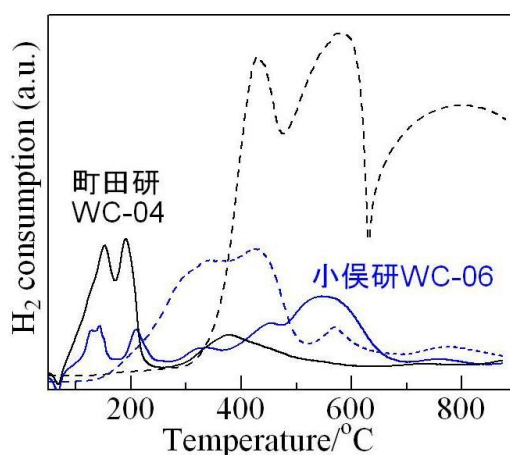


図 2-3-2-5 H₂-TPR. 点線は担体のみ(昇温速度 10K/min)

4 結言

- ・セリアの有するシンタリング抑制効果が安価な材料で代替可能であることを実証した。開発した Ag/La-Al₂O₃ は高い耐シンタリング性能と自己再生機能をもつ非セリア材料である。
- ・基準セリアの劣化過程を行い、セリアの劣化抑制に向けた基礎的知見を得た。
- ・非セリア、セリア低減 OSC 剤の酸素放出挙動解析と構造解析を行い、他グループの新触媒開発の効率化に寄与した。

研究開発項目②-3-3 : 非セリア系複合ペロブスカイト系酸化物開発

(東北大学・村松研究室)

1 緒言

セリウム使用量低減化を目指し、代替セリアとして熱的・化学的安定性が高く、高い触媒能が期待される複合ペロブスカイト系酸化物の構造、組成、結晶系、粒子形状・サイズ、表面構造などを精密に制御したナノ粒子精密制御技術の開発を目的とした。調製法には実用化を考慮に入れ、大量合成可能なゲル-ゾル法を採用することとした。ターゲットとしては、高活性・省セリウム化が期待できる Ce ドープ BaZrO₃ (BaZrO₃:Ce) 微粒子を採用した。これは、CeO₂-ZrO₂ は複雑な固溶構造を有するため高い触媒能を有するため、また BaZrO₃ は液相での調製が容易で熱的・化学的安定性が高いためである。

2 実験

粒子の調製はゲル-ゾル法を用いて、図 2-3-3-1 に示す方法によって行った。

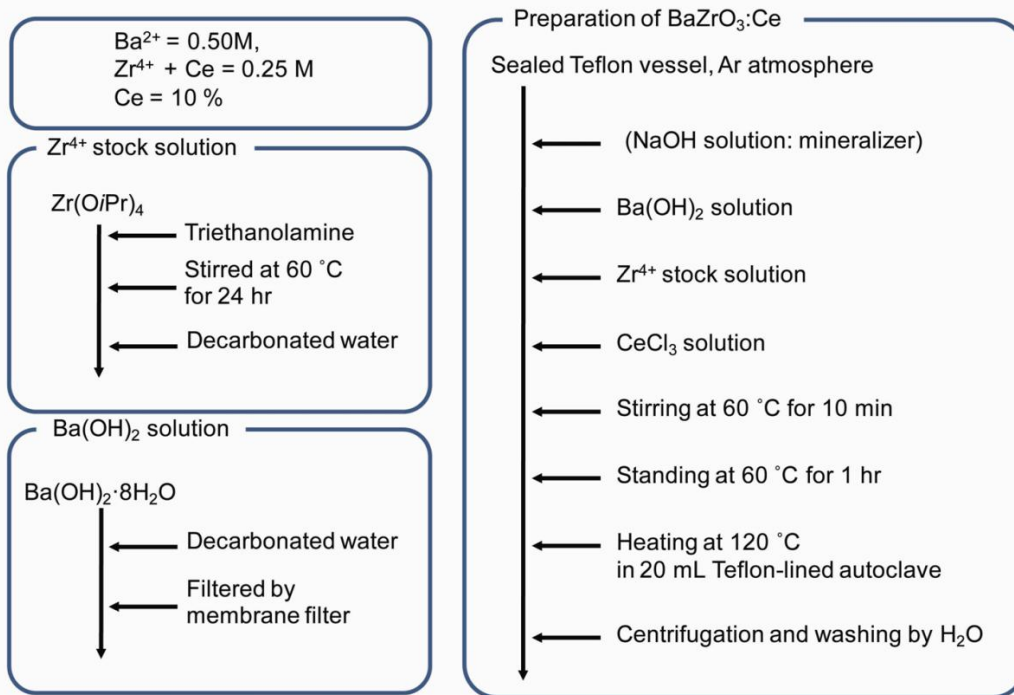


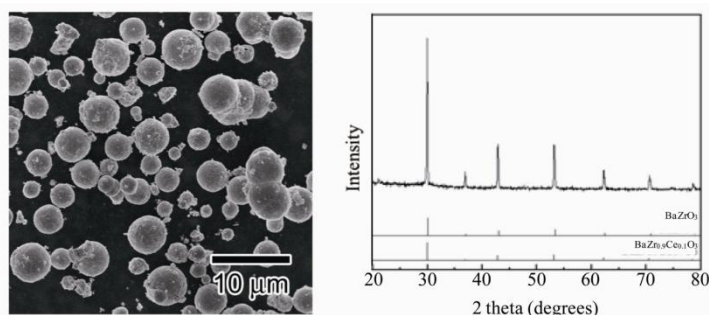
図 2-3-3-1 BaZrO₃:Ce 微粒子の合成法

解析は XRD, SEM によって行った。

3 結果と考察

i. BaZrO₃:Ce 微粒子の形態および構造

得られた粒子の SEM 像および XRD パターンを図 2-3-3-2 に示す。得られた微粒子は全て球形であることが確認された。また、得られた粒子の結晶構造は、XRD パターンからピーク位置が BaZrO₃ よりも底角側へシフトしていることが確認されたことから、Ce がドーピングされたものと考えられる。BaZr_{0.9}Ce_{0.1}O₃ 構造に近いことから Ce ドープ量は約 10% であると示唆された。



得られた微粒子のXRDパターン: BaZrO₃ より低角側へピークシフト

Ceドーピングによる面間隔距離の増加
($r: \text{Ce}^{4+} > \text{Zr}^{4+}$)

図 2-3-3-2 BaZrO₃:Ce 微粒子の形態および構造

ii. 大型リアクターを利用した BaZrO₃:Ce 微粒子の大量合成

“i” で行った合成を 120 倍にスケールアップして合成を行った。変更点を含めた合成方法を図 2-3-3-3 に示す。

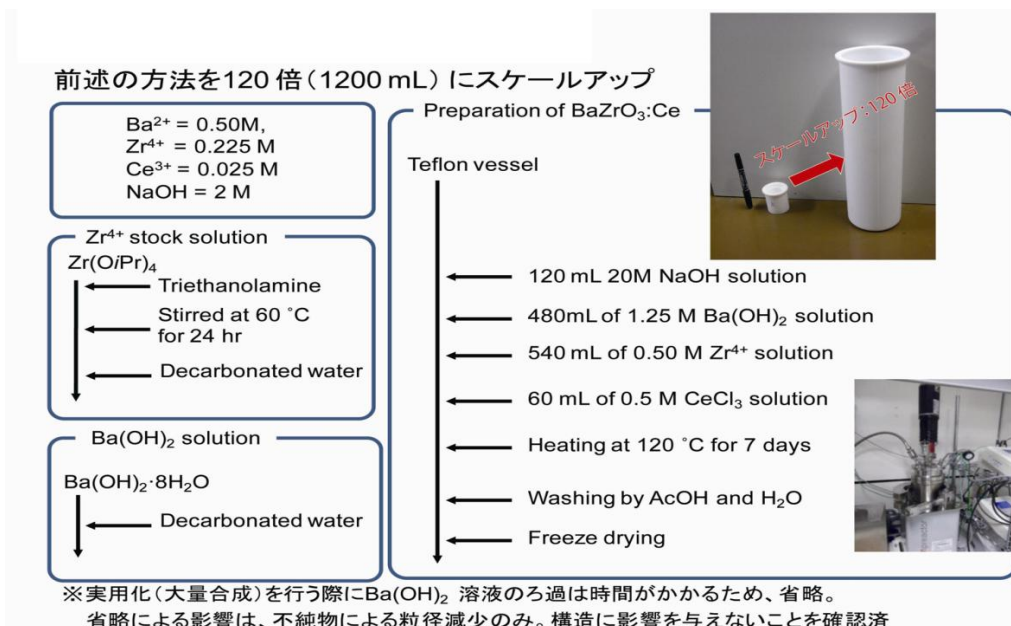
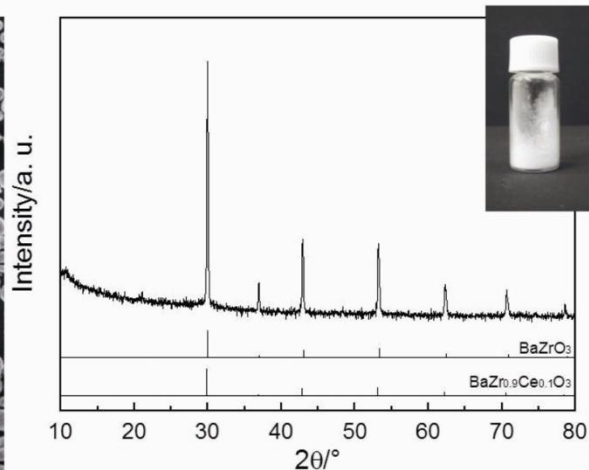
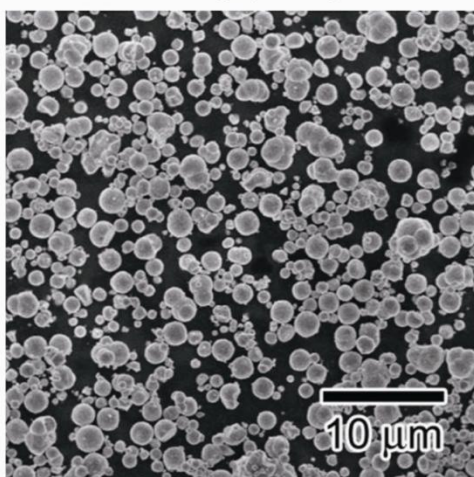


図 2-3-3-3 BaZrO₃:Ce 微粒子のスケールアップ

得られた粒子は小スケールで行った時と同様、球形でありその構造も同様であることが確認された。粒子径は小スケールで得られた粒子に比べて小さくなった。これは、スケールアップのためにフィルターによる濾過工程を省いたため、Ba源不純物が存在によるものと考えられる。

収量: 67.8 g (82%)



- ・ 構造, 組成を変化させることなく, 大量合成に成功
- ・ 得られた粒子の粒径は小スケールと比較して減少
 - メンブレンフィルターでろ過しなかったBa源不純物の影響

図 2-3-3-4 スケールアップによる BaZrO₃:Ce 微粒子への影響

4 結言

本研究では、セリアの代替材料として期待される BaZrO₃:Ce 微粒子の合成に成功し、また大型リアクターを用いることで大量合成を行うことが可能であることを示した。今後、粒子形状・サイズ、ドーパ Ce 量を変化させ最適化することで高活性代替セリア材料の開発が出来るものと期待される。

1 緒言

近年、レアアース資源の枯渇や資源保有国による輸出制限に伴う価格高騰を前提とし、レアアース使用量の大幅削減を可能とする新しい材料や技術の開発が望まれている。なかでも、酸素吸蔵能(OSC)を有するCeO₂は自動車排ガス触媒(NO_x分解触媒)に大量に使用されており、CeO₂使用量削減を可能とする新規触媒の調製は急務である。

CeO₂の機能は、担体との相互作用が大きな役割を果たしている。したがって、担持法を改良することでCeO₂と担体間の相互作用が変化し、CeO₂のポテンシャルをより多く引き出せる可能性がある。そこで、本項目では、超臨界担持法によってCeO₂へとRhを担持し、最適な酸素吸蔵能をもたらす材料の開発を検討した結果について述べる。

また、中空セリア微粒子の合成を、未利用資源であるバイオマス由来の糖質から炭素を合成し、それをテンプレートとする超臨界水熱合成についても並列にて検討する。

I 超臨界担持法による触媒調製

2a 実験

1-1 触媒担持実験

試料には、CeO₂ (173.2 m²/g, 第一稀元素工業)。また、Rh前駆体として数種の試薬を用いたが、最終的にはRh(acac)₃を採用した。なお、種々の担体+貴金属での担持実験の検討も行った。担持実験は、現有する超臨界流体装置(抽出・反応装置)を用いた。

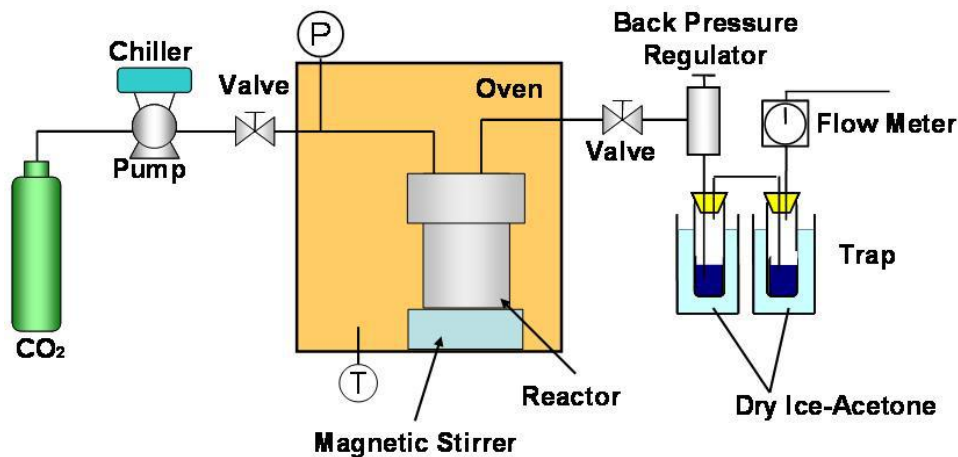


図 2-4-1-1 実験装置概略図

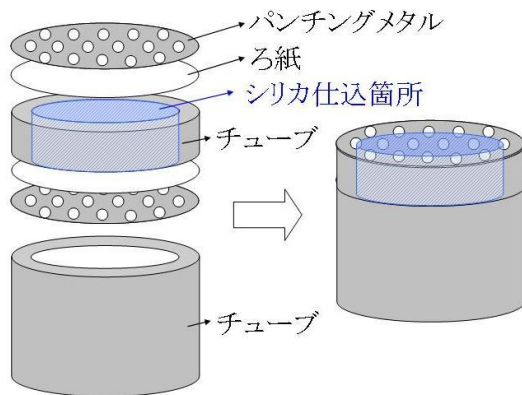


図 2-4-1-2 バスケットの構造

(Rh(acac)₃)を所定量、助溶媒としてメタノールをCO₂の物質質量に対して0~10 mol%となるようにそれぞれ反応器内に仕込んだ(最終的には0%採用)。その後、CeO₂サンプル(基準セリアA,あるいは基準セリアB)のいずれか0.5gを、直接溶媒と接触しないようにバスケットに仕込み反応器内に設

置した。恒温槽にて所定温度まで昇温後、CO₂ を所定圧力まで圧入し、5~24h（最終は 5h）処理した。実験温度は 60°C、圧力は 20、25 MPa とした。減圧冷却後にシリカを回収した。サンプルの Rh 担持量はエネルギー分散型 X 線分析装置（EDX）より定量した。また、Rh の状態は透過型電子顕微鏡（TEM）で観察し、XRD によって分散性評価を行った。

1-2 活性評価方法

i. 酸素吸蔵能(OSC)測定

OSC 測定は、中川グループにて流路切替活性試験装置を用いて行った。測定条件を以下に示す。

○測定条件

サンプル量：10 mg

昇温条件：5% O₂/He 中、20 K/min で 763 K まで、さらに 2 K/min で 773 K、以後 He (50 mL/min) に切り替え 773 K で hold

パルスガス：4% CO/He , 1.0 μmol CO; 5% O₂/He, 1.1 μmol O₂; 6 方バルブ+ループ使用

パルスシーケンス：CO パルス、O₂ パルスを検出量安定までパルス間隔 1 min で導入、3 回繰り返す。

本測定前後に air (0.12 mL; 1.0 μmol O₂) を導入して MS 感度確認。

ii. 三元触媒(TWC)性能評価方法

TWC 性能評価は、当研究室で調製した Rh/CeO₂ 触媒と、A 社製、B 社製、C 社製の 2.5wt%Pd/Al₂O₃ 触媒をそれぞれミキサーミルにて混合後、産総研チーム所有の 5 連触媒活性評価装置を用いて行った。また、比較対象として、別途調製した Rh/CeO₂ と Pd/Al₂O₃ を混合した触媒でも評価実験を行った。実験条件を以下に示す。

○実験条件

・測定対象は、触媒化したサンプルの Fresh と Aged (1000°C×20h in Air, 10%H₂O)

・測定温度 : 500°C→200°C (50°Cステップ : 計 7 測定/サンプル)

・サンプル重量 : 0.06g

・ガス流量 : 250mL/min.

・テストガス組成

NO 500ppm

C₃H₆ 400ppm

CO 0.5%

O₂ 0.5% (僅かにリーン : stoich は 0.45%)

H₂ 0.1%

CO₂ 14%

H₂O 10%

N₂ Bal.

3 a 結果と考察

2-1 Rh 担持量評価

Rh 担持量の Rh(acac)₃ 仕込み量依存性をみると、多孔性シリカの場合に比較してセリアに担持した場合には担持量が少なくなった。これは、6MG(987 m²/g)と比較してセリア(173 m²/g)は比表面積が小さいために、Rh(acac)₃ が吸着しにくいことに起因すると考えられる。

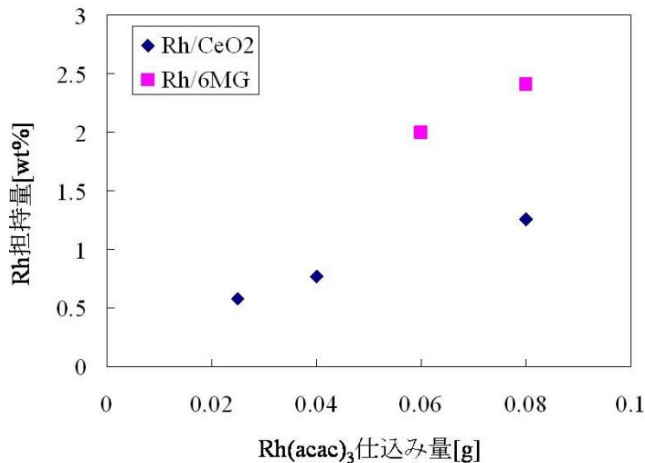


図 2-4-1-3 Rh 担持量の Rh (acac)₃ 仕込み量依存性

2-2 Rh 粒子の分散状態の評価結果

500°C, 3h 焼成後の 1.2wt%Rh/CeO₂ の XRD パターンからは, CeO₂ のピークは確認できたが, Rh に起因するピークは確認できなかった。これは, CeO₂ のピークが強いため Rh ピークが隠れてしまった可能性や, Rh が高分散であるためにピークが確認できなかった可能性がある。TEM でも Rh 粒子は確認できなかったことから, 上述の微粒子での高分散担持の可能性が示唆される。

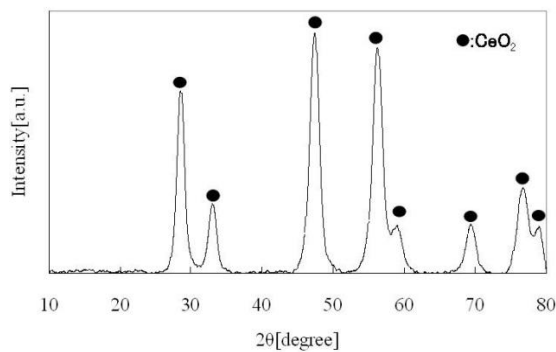


図 2-4-1-4 1.2wt%Rh/CeO₂ の XRD パターン

2-3 OSC 測定結果

調製した Rh/CeO₂ 触媒の OSC 測定結果からは, CeO₂ のみの場合と比較して Rh を担持することで高い OSC 能を示すことがわかる。しかしながら, 0.8wt%Rh/CeO₂ に関しては 1 回目と 2 回目で OSC 能に大きく差が出ている。なお, 応答性能を CO での Pulse 結果から判断すると, 立ち上がりが鋭く, 高い活性が示唆される。いずれにせよ耐久性の向上が課題であることは間違いない。また, このサンプルは焼成, 還元を行っていないため, 焼成, 還元が活性に与える影響も検討する必要がある。

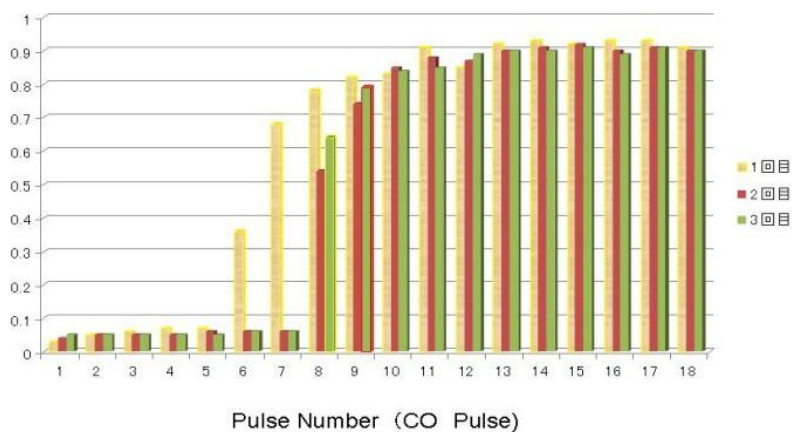


図 2-4-1-5a OSX 測定結果

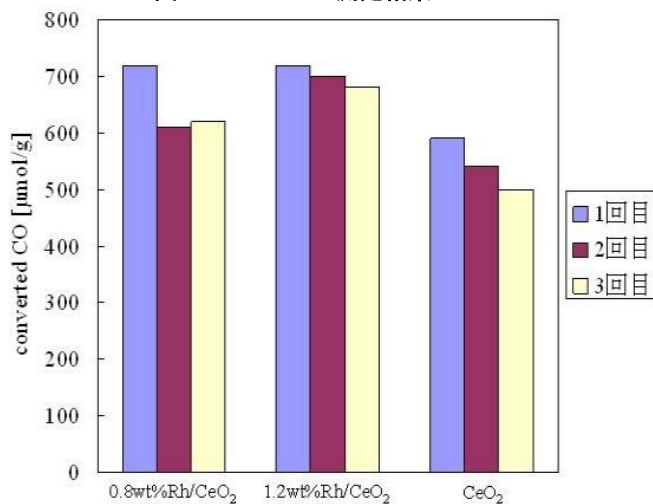
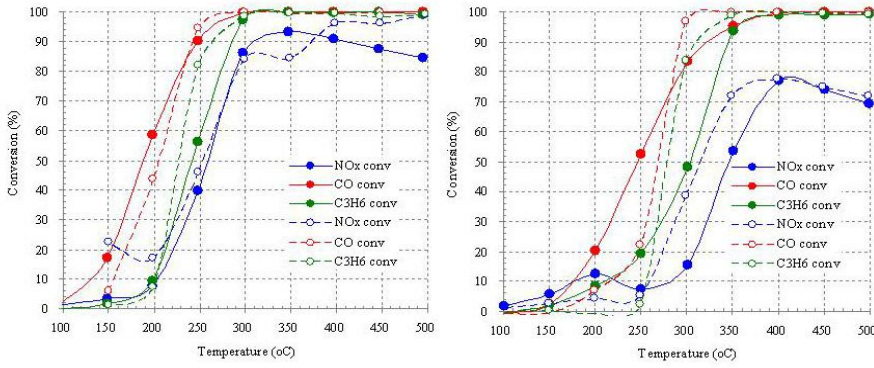


図 2-4-1-5b OSC 応答曲線

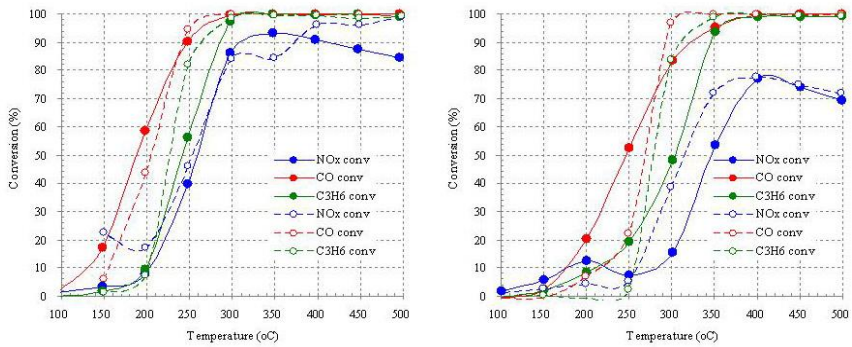
2-4 TWC 評価結果

A 社, B 社, C 社製の Pd/Al₂O₃ と Rh/CeO₂ を混合した触媒の TWC 評価結果を比較すると, B 社製の Pd/Al₂O₃ と混合したときに最も高い活性を示し, 基準触媒とほぼ同等の活性を示した。Aging 後では, 低温では基準触媒以上の活性を示唆するような挙動も見られた。このことから, 混合する Pd/Al₂O₃ 触媒によって相互作用が異なることがわかる。また, OSC で述べたように, 焼成, 還元条件によって Rh の分散性や触媒活性が異なる可能性があるため, これらの条件が TWC 活性に与える影響を詳細に検討する必要があると考える。



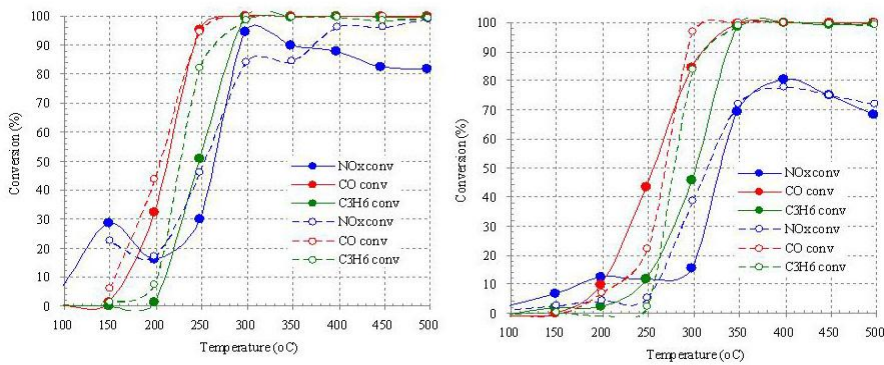
(A社- 左:Fresh, 右:Aging) (白抜きは基準触媒)

図 2-4-1-6 TWC 評価結果 (A社担体)



(B社- 左:Fresh, 右:Aging) (白抜きは基準触媒)

図 2-4-1-7 TWC 評価結果 (B社担体)



(C社- 左:Fresh, 右:Aging) (白抜きは基準触媒)

図 2-4-1-8 TWC 評価結果 (C社担体)

II セリアの水熱合成

2b 実験

1-1 糖炭化物の合成

内容積 40 ml の耐圧容器にて 4.8 M グルコース水溶液 20 ml を 180 °C、3 h 反応させ炭化物を生成させた。1 M 硫酸を 1 wt%仕込んだ実験により硫酸の効果を検討した。炭化物は減圧ろ過によりろ別後、

一晚乾燥して秤量し、収率を評価した。XPS を用いて固体生成物表面の炭素および酸素それぞれの存在形態分布を分析した。

1-2 中空セリア粒子合成

内容積 10 ml の耐圧容器に、上述の実験により合成した糖炭化物 0.4 g と 0.4 M $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 水溶液 5 ml を加え、180 °C、1 h 反応させた。生成物を遠心分離後上澄みを除去し乾燥させた後、550 °C、3 h 焼成した。焼成後に得られた固体生成物を XRD および TEM により分析した。

3b 結果と考察

硫酸を添加することで固体炭素の収率は向上（無添加：5.7%→添加：9.8%）した。表面の炭素／酸素の比率を XPS 分析結果から求めたところ、硫酸を添加することで表面の酸素は減少（無添加：24%→添加：20%）した。

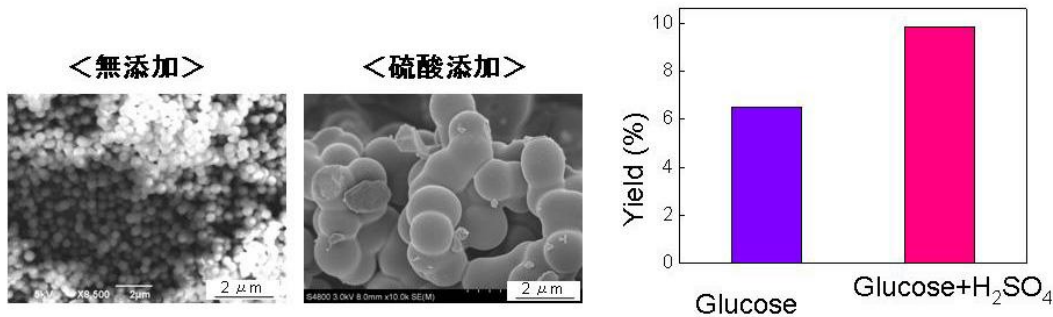


図 2-4-1-9 グルコース炭化物の SEM 像とその収率

[反応温度:180 °C、反応時間:3 h、硫酸添加量:0.16 g]

炭化物表面の酸素 1s 電子に由来する XPS スペクトルに与える硫酸添加の効果について、スペクトルを C-OH、-COOR を仮定して分割し評価すると硫酸を添加することで C-OH が -COOR に対し減少していたことから、硫酸は主に脱水反応を促進し表面水酸基濃度を著しく減少させた可能性が示唆された。

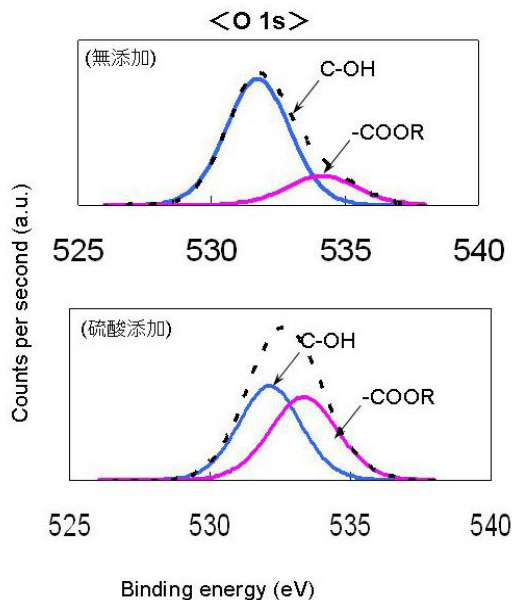
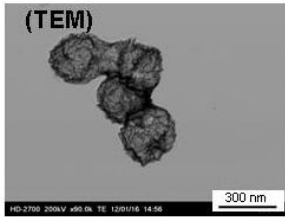


図 2-4-1-10 XPS スペクトル

XRD により固体生成物はセリアであった。硫酸無添加と硫酸添加で得られた炭化物を共存させて合成したセリア粒子の TEM 写真を観察すると、硫酸無添加の場合のセリア粒子はナノサイズの一次粒子が連なった中空粒子であったのに対し、硫酸を添加した場合は凝集体であった。

<硫酸無添加の場合>



<硫酸を添加した場合>

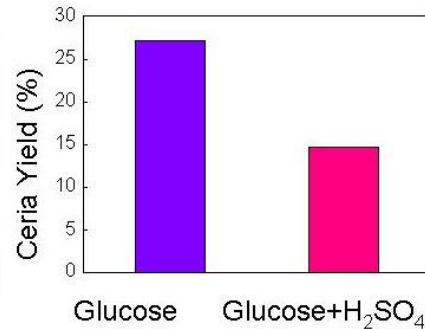
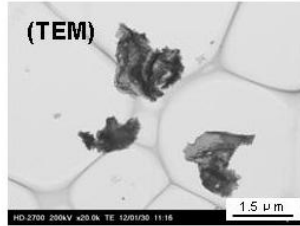


図 2-4-1-11 合成したセリア粒子の TEM 像とセリア収率
[反応温度:180 °C、反応時間:1 h、硫酸添加量:0.16 g]

以上より、セリア前駆体を表面に吸着させるためには OH 基が有用である可能性が示され、今後の合成方針が得られた。

4 結言

超臨界担持法を多孔性シリカ以外の担体として CeO₂ 対して適用し、Rh 担持による排ガス浄化触媒への応用を検討した。その結果、Rh 添加による OSC 能の向上がみられ、TWC 性能に関しては従来触媒と同等の活性を示すことがわかった。今後の課題としては、焼成、還元条件が Rh 分散性や触媒活性に与える影響を検討し、Rh-CeO₂ 間の相互作用を解明する必要があると考える。

また、セリア水熱合成については、炭化と水熱合成の 2 段階で行うことで中空セリアが得られることが判明した。次の課題は、炭化物表面がセリアと親和性の高い状態になる炭化条件の策定である。

研究開発項目②-4-2 : マイクロ波調製技術の開発

(東北大学・滝澤研究室)

1 緒言

自動車排ガスを浄化する三元触媒において、助触媒として大きな OSC 能を有する酸化セリウムが広く使用されている。しかしながら近年の原産地の偏りによる急激な価格変動や供給不安から希土類元素を使用しない代替材料の開発が急務である。

本研究では、OSC 発現が確認されているデラフォサイト型 CuFeO₂ を主相(図 2-4-2-1)とし、OSC 能向上や熱サイクル安定性改善といった複合的効果を目的として、マイクロ波プロセッシングを用いた低温短時間合成による粒子の微細化・酸素欠陥の導入、貴金属系合金ナノ粒子のナノコンポジット化による粒子・結晶子径の微細化・高温機械的特性の改善について検討を行った。

デラフォサイト型 CuFeO₂ 一般式: ABO₂

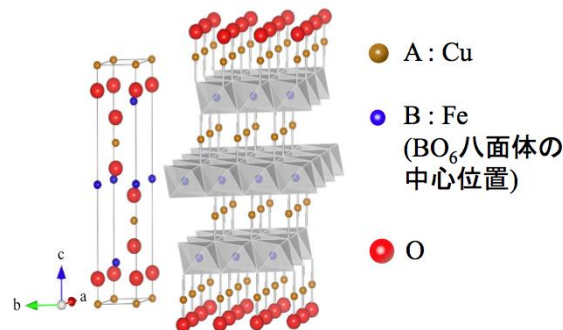


図 2-4-2-1 デラフォサイト型 CuFeO₂ 構造

2 実験

CuFeO₂ 及び貴金属系ナノ粒子分散 CuFeO₂ ナノコンポジットの合成(図 2-4-2-2)
CuFeO₂ は、Cu₂O、γ-Fe₂O₃ を所定比に混合し、2.45GHz マイクロ波合成装置を用いて、500°C、10min

～30min の照射で合成を行った。

貴金属系ナノ粒子分散 CuFeO₂ ナノコンポジットは、エタノール溶媒に CuFeO₂ 原料である所定比の Cu₂O、 γ -Fe₂O₃ に、貴金属源である PtO₂ を最大 5 vol.% 加え、ビーカースケールマイクロ波装置を用いて、PtO₂ の還元を行い、Cu₂O 粉末・ γ -Fe₂O₃ 粉末・Pt ナノ粒子(3nm)の混合粉末を得た後、2.45GHz マイクロ波合成装置を用いて、500°C, 10min～30min の照射で合成を行った。

同様な手法でPtの代替に安価なPdを使用して合成を行った。

合成した粉末は、相同定・熱分析・微細組織観察・OSC 測定（東北大富重研中川助教依頼）を行い評価した。

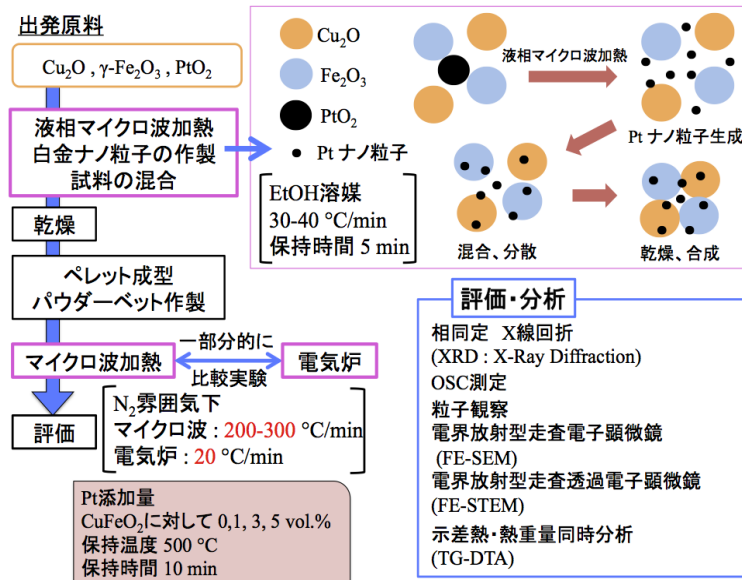


図 2-4-2-2 合成コンセプト及びフローチャート

3 結果と考察

●相同定(図 2-4-2-3)

通常は CuFeO₂ に、800°C, 6h を必要とするが、マイクロ波加熱を用いることにより、500°C, 10min という低温・短時間で合成することが可能になった。Pt ナノ粒子を添加したものは、マイクロ波合成時に、Pt ナノ粒子が Cu-Pt 及び Fe-Pt 合金に変化した。通常の合成法では(電気炉)、合金に変化せず、Pt 相が検出された。

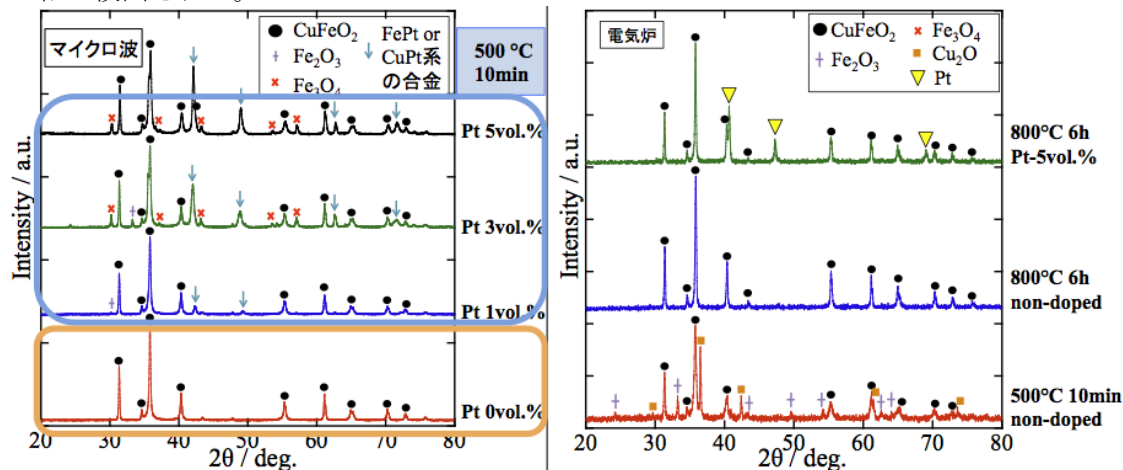


図 2-4-2-3 XRD 測定

●OSC 測定(図 2-4-2-4)

合成したサンプルの OSC 測定において、通常合成のサンプルではサイクルを繰り返す毎に特性が低下し、3 サイクルで 1/10 以下になったが、マイクロ波合成において 3vol.% の Pt ナノ粒子を添加し、Pt 合金相を有するサンプルでは、1/3 程度の劣化に留まった。3 サイクル目の OSC 値は基準セリアの約 2 倍の値であった。

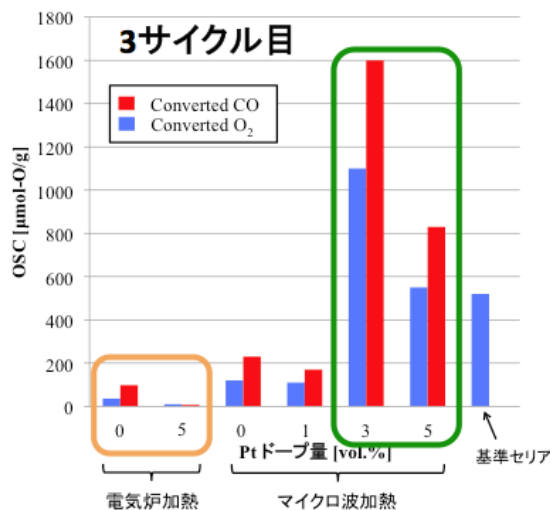
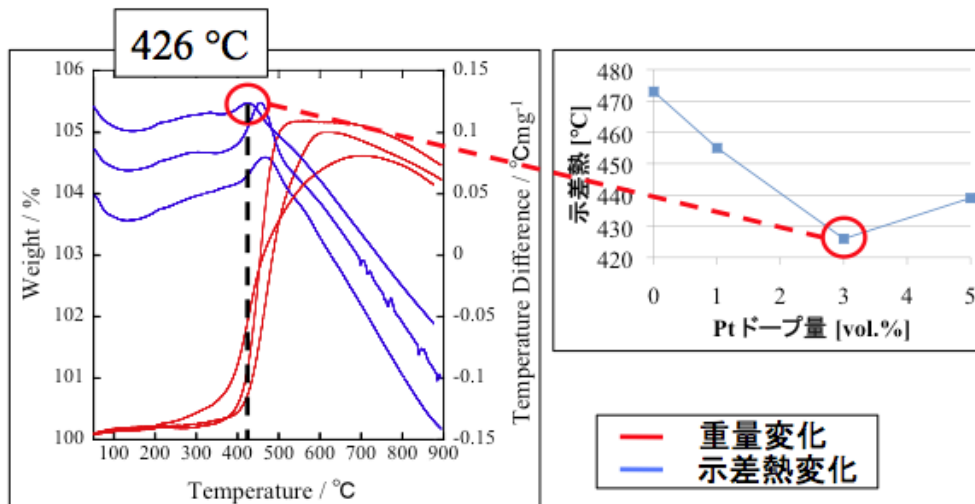


図 2-4-2-4 簡易 OSC 測定

●熱分析測定 (図 2-4-2-5)

合成したサンプルの大気中の TG-DTA 分析において、Pt ナノ粒子の添加増加 (Pt 合金相の増加) に従い、酸素吸蔵温度が低温に移動した。3vol.%Pt ナノ粒子添加で温度が一番低下し、添加していないサンプルに比べて 50°C 近く低下した。



Pt 0,1,3 vol.% 添加 CuFeO₂ の TG-DTA 曲線

図 2-4-2-5 TG-DTA 測定

●微細組織観察 (FE-SEM) (図 2-4-2-6)

通常の合成法 (電気炉合成 800°C, 6h) では、CuFeO₂ 粒子が数十 μm まで粗大化した。一方マイクロ波合成では、500°C, 10min という低温・短時間で合成することが可能になり、粒子サイズが数百 nm まで微細化した。Pt ナノ粒子を添加し Pt 合金相を有するサンプルでは、更に微細化した。これらは多結晶粒子である。結晶子サイズにおいても (図 2-4-2-7) 50nm (Pt ナノ粒子無添加) から 20nm (5vol.%Pt) まで微細化した。

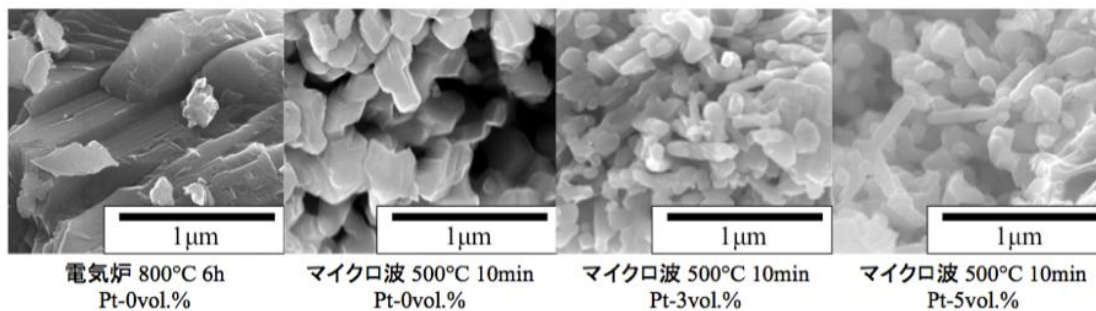


図 2-4-2-6 FE-SEM 観察

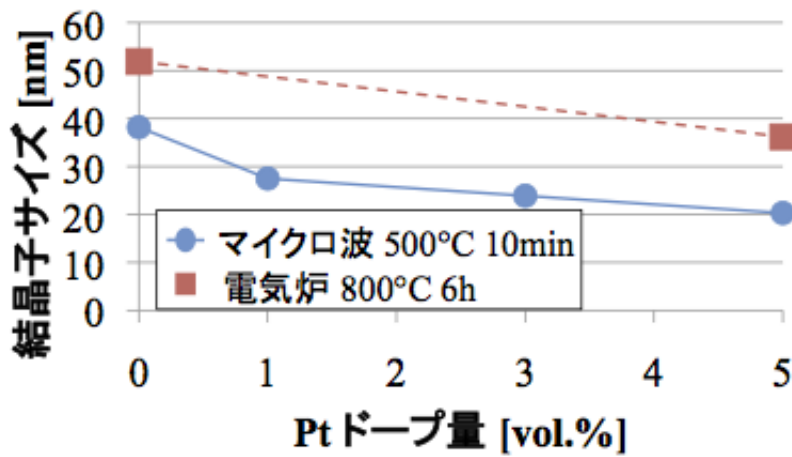


図 2-4-2-7 結晶子サイズ

●OSC 測定前後の微細組織観察(図 2-4-2-8)

OSC 測定前後のサンプルの微細組織観察では、Pt ナノ粒子を添加したサンプルは、添加していないサンプルと比較して、粒子のネッキング・焼結が発生していなく、熱サイクル特性の向上が見られた。また、通常の合成法のサンプルは、OSC 測定時に結晶構造が崩れ表面性状が大きく荒れ粉化、OSC 能が著しく低下するが、マイクロ波合成のサンプルはそのような状態は観察されなかった。

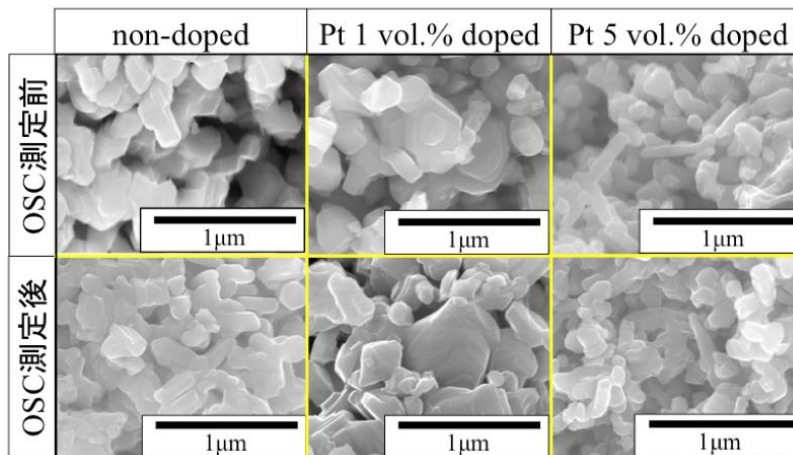


図 2-4-2-8 OSC 測定後の FE-SEM 観察

●微細組織観察(STEM) (図 2-4-2-9)

Pt ナノ粒子を添加し Pt 合金相を有するサンプルの STEM 観察を行った。FE-SEM による表面観察では、表面に Pt 合金相が観察されなかったが、透過像と EDX により粒子内部に Cu-Pt 及び Fe-Pt 合金ナノ粒子が複合化されていることが判明した。これらの合金ナノ粒子が合成時に CuFeO₂ の粒界移動をピンニングすることによって粒子・結晶子サイズを減少、OSC 測定時の CuFeO₂ 多結晶粒子の転移の移動抑制によって熱機械的特性の向上、また Cu-Pt・Fe-Pt 合金ナノ粒子の触媒活性化等によって特性が向上したと考えられる。

Pd の場合も特性が向上し、同様の理由が考えられる。

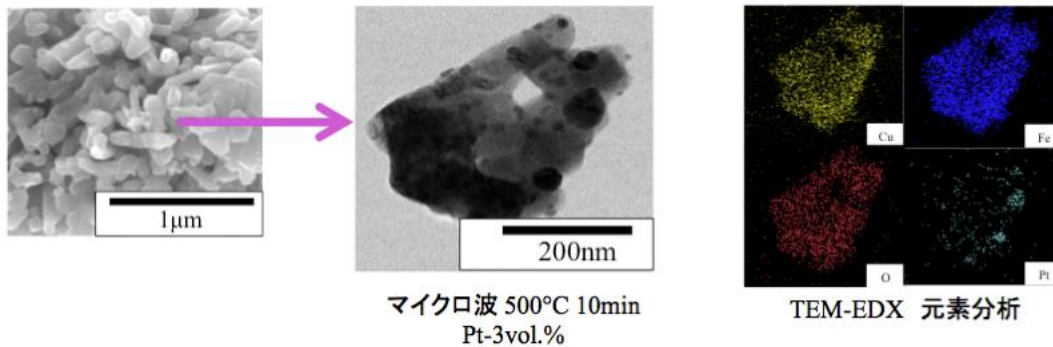


図 2-4-2-9 STEM 観察および EDX 分析

●TWC 特性評価 (図 2-4-2-10) (図 2-4-2-11)

今回合成した 3%Pd/CuFeO₂ のサンプルと基準触媒の TWC 特性の比較を行った。合成したサンプルは 3%Pd/CuFeO₂-Al₂O₃+1wt% Rh/CeO₂、(CuFeO₂-Al₂O₃):CeO₂= 2:1 の条件で混合を行い、基準触媒 2.5% Pd/Al₂O₃+1%Rh/CeO₂ (2:1) [Pd/Al₂O₃, CeO₂(A) 使用-Rh 担持] と比較した。Fresh、Aged 共に 3%Pd/CuFeO₂ は、CO₂ 浄化率は、基準サンプルよりも低温から浄化反応する傾向を示した。今後材料組成及び構造の最適化による TWC 特性の向上を検討する必要がある、そのために組成・構造が TWC 活性とどのような相関関係があるのか調査する必要がある。

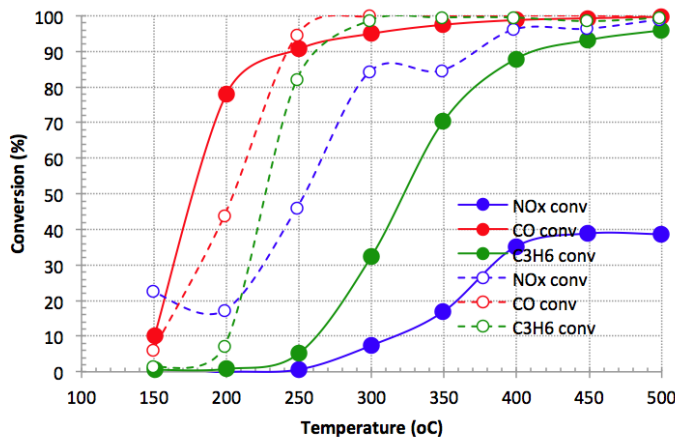


図 2-4-2-10 TWC 特性 (Fresh)

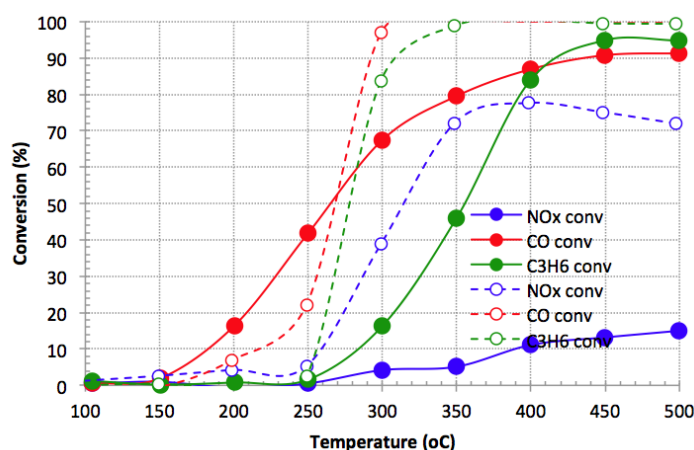


図 2-4-2-11 TWC 特性 (Aged)

4 結言

マイクロ波プロセスを用いて、デラフォサイト型 CuFeO₂ の合成することによって、通常の合成法よりも低温短時間で合成が可能であり、粒子の微細化(表面積の向上)と酸素欠陥の導入が示唆された。

また、Pt 及び Pd 貴金属系微粒子のデラフォサイト型 CuFeO₂ へのナノコンポジット化プロセスを開

発することにより、OSC 能と CuFeO₂ の熱サイクル特性の向上を達成した。

研究開発項目②-4-3 : 調製パラメータの最適化

(東北大学・小俣)

1 緒言

セリアの性質は添加物により様々に変化し OSC 能、耐熱性などが向上することが知られている。また OSC 能は表面積の増加とともに向上し、その後ほぼ一定となることが報告されている(図 2-4-3-1, V. Raju, et al., Applied Catalysis B: Environmental 91 (2009) 92-100)。これを踏まえて本項目では、まず、セリア材料の高表面積化に取り組み、その後 OSC 能の向上に取り組んだ。短期間のプロジェクトで目標を達成するためにはコンビナトリアルケミストリーの高速ライブラリー合成、ハイスループットスクリーニング、インフォマティクス的手法が有効であり本プロジェクトでもこれらの手法を随所に取り入れ効率の良い開発を行った。

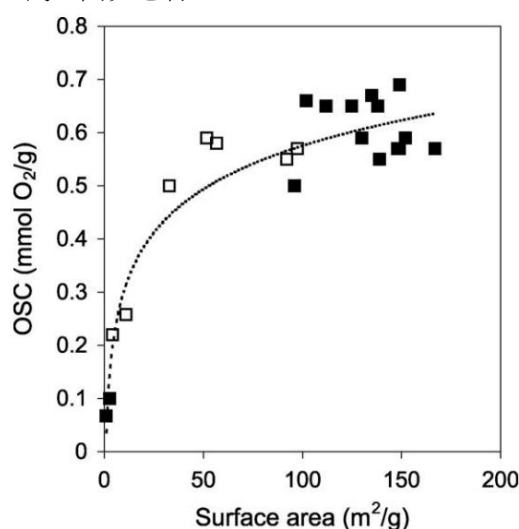


図 2-4-3-1 セリアジルコニアにおける表面積と OSC の関係

インフォマティクス的手法として主に非線形回帰を用いて添加物探索、組成最適化を行った。本プロジェクトで扱うような機能性材料の場合、組成だけでなく、原料やささいな調製条件の違いなどにより性能が大きく左右されることが知られており、従来の応答曲面法で用いられている線形回帰では性能を正しく表現することは困難である。そこでサポートベクターマシンなどの非線形回帰を用いることとした。これまで実験計画法の直交表を使って反応条件などの最適化を行った経験から、「少数の事例」として入力値が広い範囲にわたって分散していることが望ましいといえる。また入力値相互の間に相関があると、モデルに多重共線性という性質が現れてしまい統計的に有意な推定値が得られないことがある。これら为了避免のために、主成分-非線形回帰手法として、

1. 物性値の主成分分析
2. 主成分に基づく元素のクラスタリング
3. 各クラスターから、モデル用元素の選択
4. 実験
5. 回帰モデルの作成と予測

というステップを行った上でモデルを構築した。

2 実験

i. 酸化物調製

本項目における OSC 能向上の手段は、基本的に添加物の組み合わせを変えることであり、最終的にハニカムで評価する際には多量合成が必要となることと考え合わせて、調製にはなるべく単純な方法を採用した。少量多種類のサンプルはリング酸法で図 2-4-

3-2 に示すようなパラレル調製の技法を用いて調製条件を揃え一度に調製した。多量合成ではこれに加えて共沈法，混錬法を用いて調製した。前駆体はマッフル炉中 600°C，2h 焼成後，必要に応じて 1000°C，20h 焼成してから評価した。

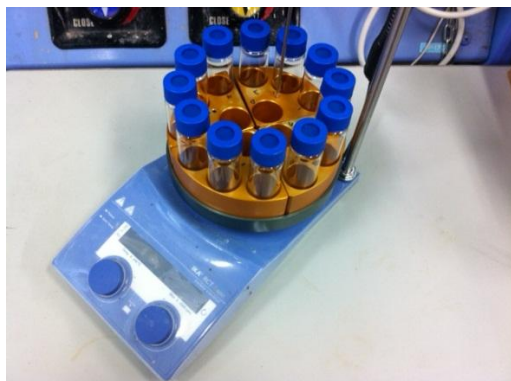


図 2-4-3-2 少量多種類サンプルの調製

ii. OSC 能評価

BET 表面積測定は Adsotrac(日機装，購入備品)，XRD 測定には Mini Flex II(Rigaku)を用いた。表面積は OSC 能と密接に関連する物性値であるが，試料の前処理も含めると測定に時間がかかるため HTS に用いるには適さない面がある。基準サンプルについて測定したところ図 2-4-3-3 のように XRD の回折ピーク幅から求まる結晶子径の逆数と良い相関が見られたため，HTS では測定時間が短い XRD を用いることとした。

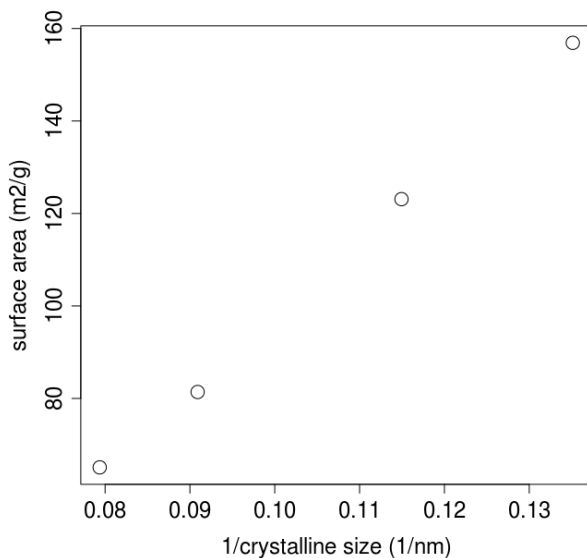


図 2-4-3-3 結晶子系と比表面積の関係

OSC 能評価はパルス法(大気圧ガス分析装置，サーマルマスフローコントローラー，オートガスサンプラーなどの購入物品からなる自作装置)，TG 法(Rigaku，差動式示差熱天秤，購入備品)にて行った。パルス法では反応ガスの SV を厳密にコントロールして OSC 能を評価できるため，組成の最適化したサンプルなどの最終評価に用いた。一方探索段階で多数の試料を評価する場合には，熱天秤を用いた。試料室雰囲気を 1%水素/ヘリウムと 0.5%酸素/ヘリウム間で 15 分間隔で切り替えたところ図 2-4-3-4 の結果が得られたので振幅の最大幅を ΔW として OSC 能として評価した。

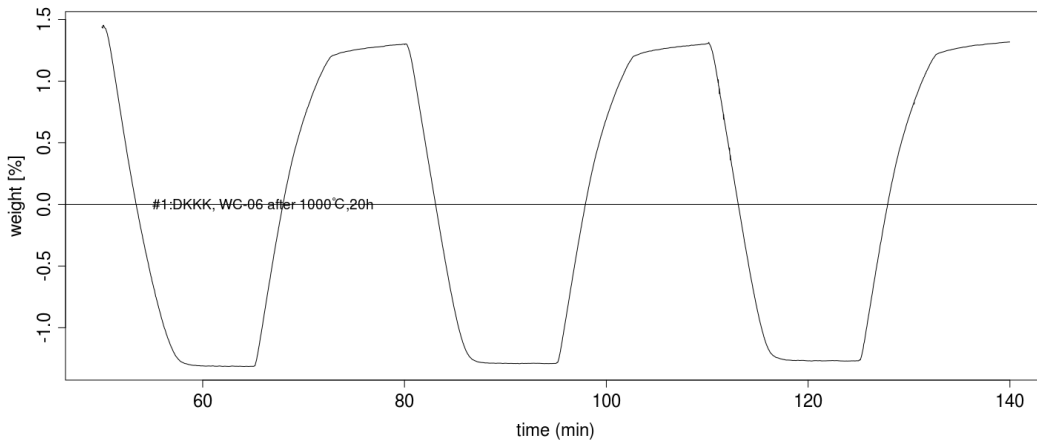


図 2-4-3-4 蒸気ガスへ応答曲線

以上、XRD 回折幅を用いて表面積の指標を得、熱天秤を用いて OSC 量の指標を得る手法を確立したことにより当初計画の「高速データロガーと X 線回折装置による触媒サンプル評価システム(第 1 四半期)」, 「大気圧マスフィルターによる評価システム(第 2 四半期)」で想定していたものと同等の情報が、より迅速に得られたため、HTS には主に本手法を用いた。

iii. 非線形回帰手法

非線形回帰モデルの作成には R によるコードを実行した。ラジアル基底関数(RBFN)はすべて自作のプログラム、サポートベクターマシン(SVM)は e1071 ライブラリーの svm 関数、ガウシアンプロセス回帰(GPR)は tgp ライブラリーの bgp 関数を用いた。計算は複数の PC(購入物品)を並列に用いて実施した。今回の探索に用いた添加元素物性値(酸化物生成エンタルピー, イオン化ポテンシャル, 蒸発熱, 熱電導度, 共有結合半径, 密度, 熱容量, 原子量, 融点, 沸点, 溶融熱, イオン半径, 電気陰性度, 双極分極率, 価数)の主成分分析の結果を図 2-4-3-5 に示す。固有値が 1 を越える主成分がもとの変数より多くの情報量を含んでいることから、第 4 主成分までを用いることで十分な情報が得られることが示されたが、今回の解析では念のために第 5 主成分まで用いた。

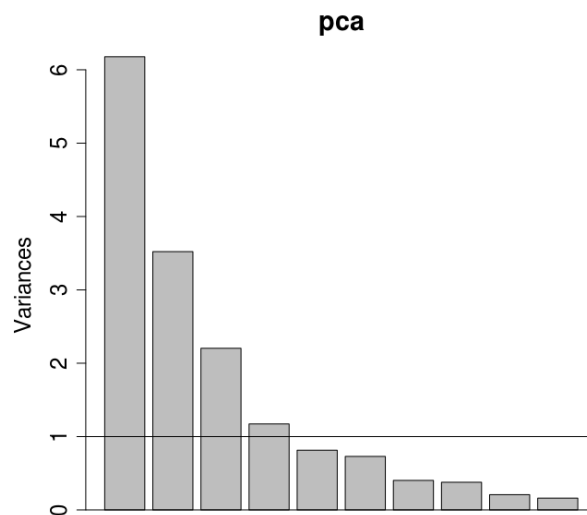


図 2-4-3-5 元素物性値の主成分固有値

3 結果と考察

i. セリアジルコニアへの添加物探索

1000°C, 20h 焼成後でも高い表面積を保てる添加物を探索した。セリアジルコニアは高

温焼成で Ce リッチ相, Zr リッチ相に相分離することが知られており, 図 2-4-3-6 に示すように添加物によっては相分離を防げる.

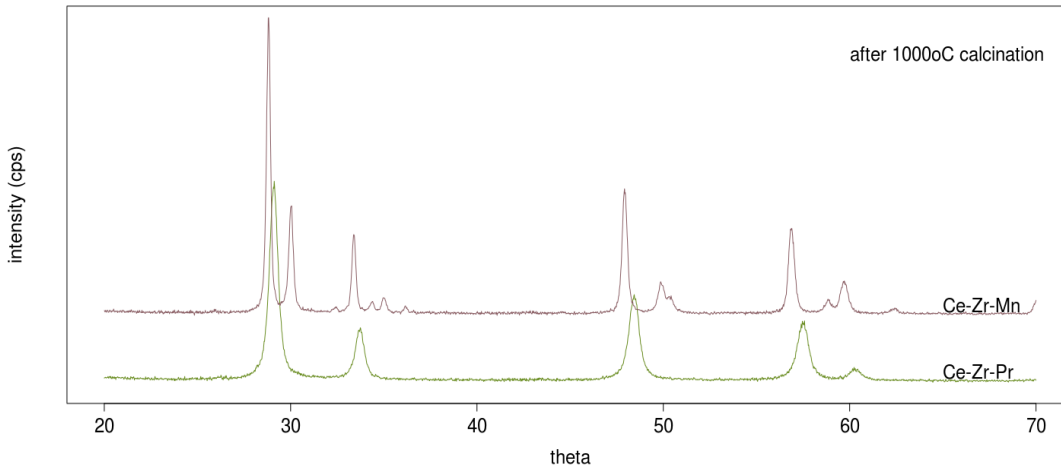


図 2-4-3-6 セリアジルコニアの相分離

後述のように相分離すると表面積が低下する傾向が認められたため, 相分離を防げることも添加物の必要条件とした. 表 2-4-3-1 に回帰モデル作成用の最初のデータと, 各モデルの予想に基づいて追加した実験データを示す.

表 2-4-3-1 セリアジルコニア表面積への添加物効果

item	無添加	学習用元素										追加元素		
	non	Na	Cs	Zn	W	Fe	Pr	Pd	Mg	Mn	Li	Bi	Si	P
表面積	83.9	70.7	37.0	21.2	5.4	14.1	52.0	83.8	70.9	13.7	11.8	20.5	55.4	38.1
相分離	?	yes	no	yes	yes	yes	no	no	yes	yes	yes	yes	no	no

図 2-4-3-7 に実験結果を示す. 相分離すると表面積が小さくなる傾向, 相分離しないと表面積は高い傾向が見られた. ただし, Na, Mg 添加では相分離したが表面積は例外的に高かった.

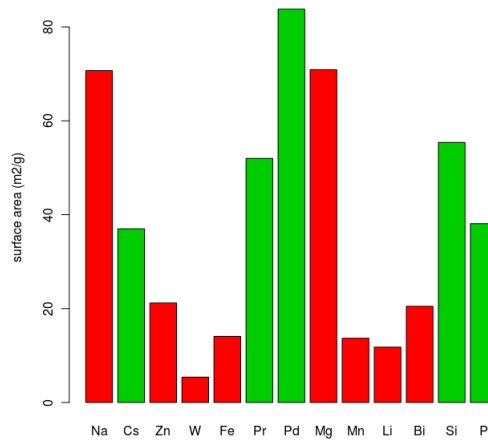


図 2-4-3-7 セリアジルコニア表面積, 相分離への添加物効果

この図の 13 元素の結果から相分離するかないかを SVM で推定した結果を図 2-4-3-8 に

示す。相分離しないと推定されるのはランタノイド、貴金属系、重いアルカリ金属、アルカリ土類金属を添加する系であった。

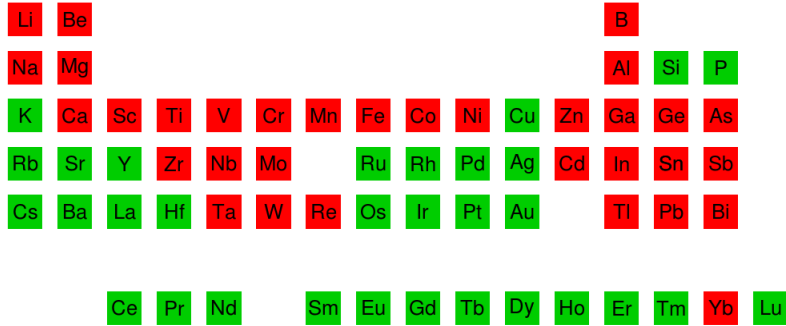


図 2-4-3-8 セリアジルコニア相分離への添加物効果推定結果

この結果を用いて相分離に効いている物性値を推定するために各元素の物性値と相分離の相関係数 (no=1, yes=0 として) を求めた。図 2-4-3-9 に示すようにサイズが大きい方が相分離しにくい傾向が明らかとなった。一方で、例えば電気的雙極子モーメントは原子サイズが大きいほど大きい傾向があるため、このような隠れたパラメータが真に効いている可能性はあるものの、非線形回帰モデルを利用することで、ある現象の要因を特定できる可能性が示された。

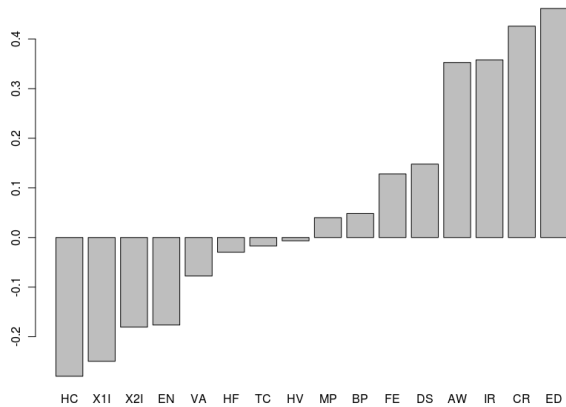


図 2-4-3-9 相分離の決定要因の解析

以上の 13 元素の添加結果から表面積を向上させる添加物として SVM は Pd, Mg, Na, RBFN は Rh, Pd, Ca, Cu, Ru, を推奨した。従って、元の学習用データ、貴金属、ランタノイドを除くと Ca が有望と結論された。そこで、相分離しないと推定された添加物 Sr, Ba と合わせて調製・実測したところ表面積は Ca(73)>Sr(64)>Ba(68)となり推定が正しいことが裏付けられた。さらにパルス法で評価した結果、図 2-4-3-10 に示すように表面積だけでなく OSC 能も高いことが示された。

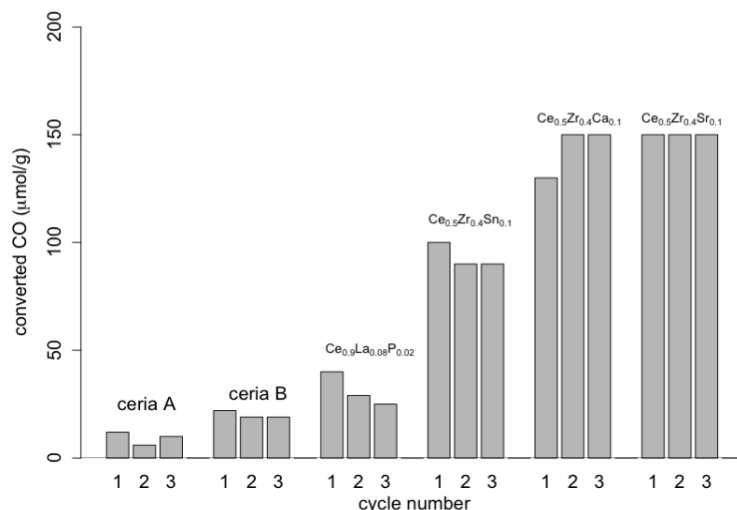


図 2-4-3-10 セリアジルコニアの OSC 能へのアルカリ土類添加物効果

図 2-4-3-11 に示すように Mn 添加が表面積, OSC 向上に有効でありこのデータを用いて構築した非線形回帰モデルでもこれ以上の添加物は示されなかった.

ii. セリアジルコニアカルシアへの添加物探索

同様の手法により Ce-Zr-Ca の表面積と, 今回は OSC 量を向上させる添加物を探索した.

表 2-4-3-2 セリアジルコニアカルシアへの添加物効果									
item	学習用元素								
	Na	Cs	Zn	W	Fe	Pr	Pd	Mg	Mn
表面積	154	182	200	185	203	196	154	219	218
Δ W(%)	0.346	0.420	0.415	0.046	0.489	0.302	0.555	0.462	0.793

図 2-4-3-11 に示すように Mn 添加が表面積, OSC 向上に有効でありこのデータを用いて構築した非線形回帰モデルでもこれ以上の添加物は示されなかった.

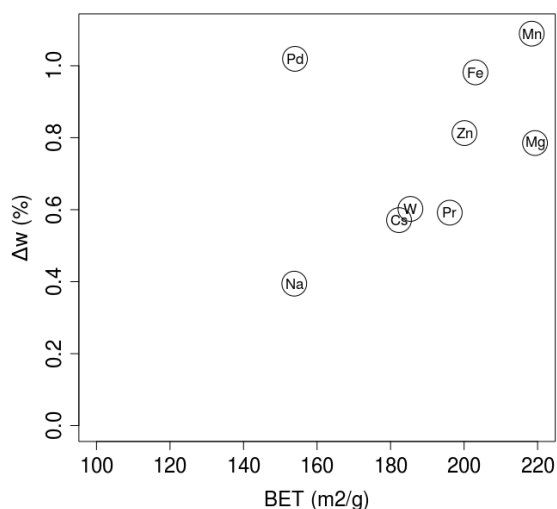


図 2-4-3-11 セリアジルコニアカルシアへの添加物効果

本系の OSC 量を向上させるために Ce 量を 50mol% に固定し、実験計画法と SVM を組み合わせて Ce-Zr-Ca-Mn 酸化物の最適組成を決定した。図 2-4-3-12 に調製した試料の組成と実験結果から SVM で推定した OSC の推定値を示す。

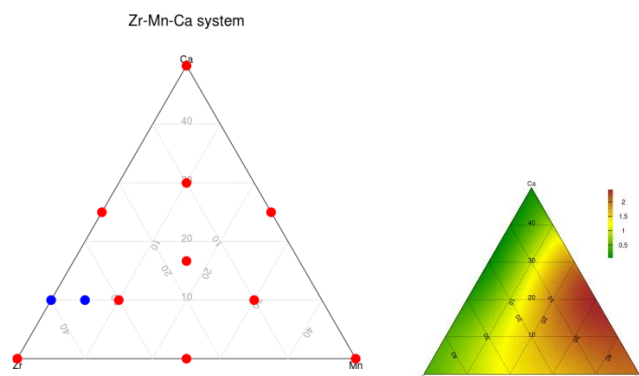
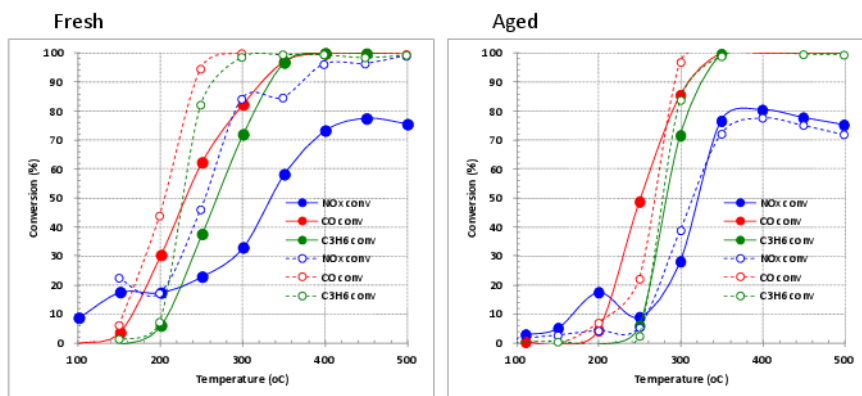


図 2-4-3-12 Ce_{0.5}-(Zr-Ca-Mn)_{0.5} 酸化物の組成最適化

この結果 SVM による最高値は Ce_{0.500}Mn_{0.305}Ca_{0.195} の 2.397 と推定され、Zr を含まない酸化物の OSC が高いことが見出された。この結果を受けて、本組成の酸化物が大量合成されることが決定されたが、それに先立って Ce_{0.5}Mn_{0.5} 酸化物の多量合成法を検討した。その際、一部を TWC 触媒化して評価したところ、活性が基準触媒と同等で、耐久後の劣化が極めて少ない材料であることが示された(図 2-4-3-13)。

(SDONC-03) 1Rh/Ce_{0.5}(IV)Mn_{0.5}O₂ + 2.5wt%Pd/Al₂O₃ (1:2)



白抜き-破線は基準触媒

Fresh	NOx	CO	C ₃ H ₆	Aged	NOx	CO	C ₃ H ₆
活性指数	68	89	86	活性指数	106	103	98
				失活率(%)	0	6	7

*活性指数: 基準触媒の活性を100

*失活率: エージングによる活性低下率(基準触媒失活率: NOx 36%, CO 20%, C₃H₆ 19%)

図 2-4-3-13 Ce_{0.5}Mn_{0.5} の TWC 結果

この組成の酸化物の結晶構造はセリアと同等(図 2-4-3-14)であるが, Ca を含まないものに比べて OSC の量は若干劣るものの酸素吸脱着の速度が速い(図 2-4-3-15)ために TWC 能が高かったと考えられる。

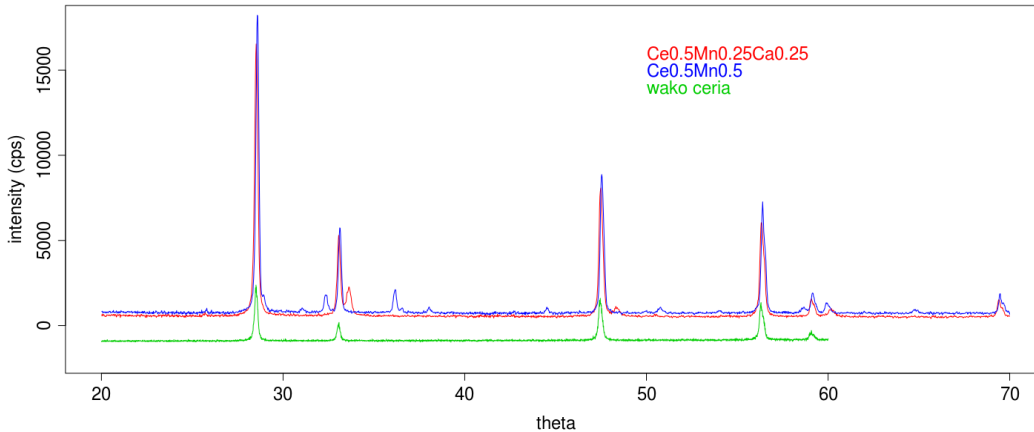


図 2-4-3-14 Ce_{0.5}Mn_{0.5} の結晶構造

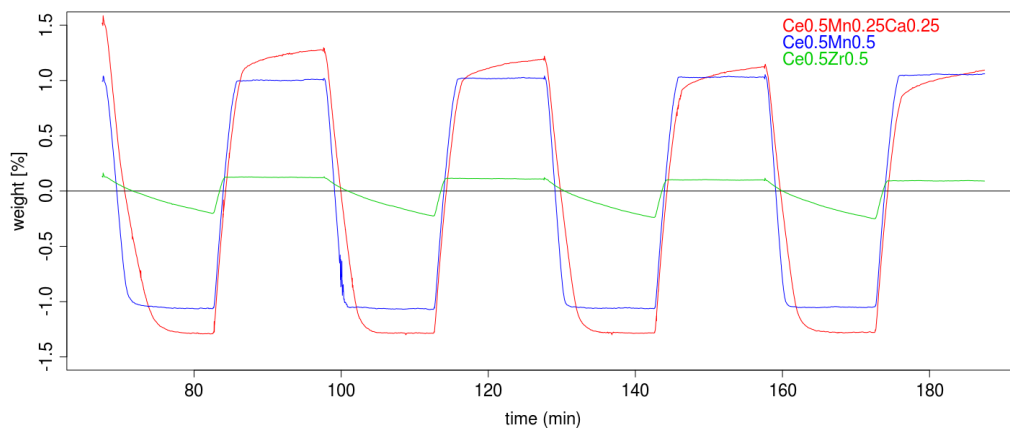


図 2-4-3-15 Ce_{0.5}Mn_{0.5} の OSC 挙動

iii. Ce-Ca-Mn 酸化物の組成最適化

Ce₅₀mol%という制約を外して Ce-Ca-Mn 酸化物の最適組成を求めた。他グループより有望とされた Ce-Fe-Mn 系も本研究と同じ調製法で調製して組成の効果を測定した(図 2-4-3-16)。その結果, Ce, Zr を含まない Mn-Ca 酸化物が最適であることを見出した。本酸化物系は高温で焼成したほうが ΔW が大きくなることと XRD 測定の結果から, 高い OSC 能はペロブスカイト型 CaMnO₃ の形成に由来すると考えられる。本酸化物を TWC 触媒化して評価したところ, 活性は基準触媒より若干低いものの, ほぼ同等であり, 非セリア系の材料として有望であることが示された(図 2-4-3-17)。

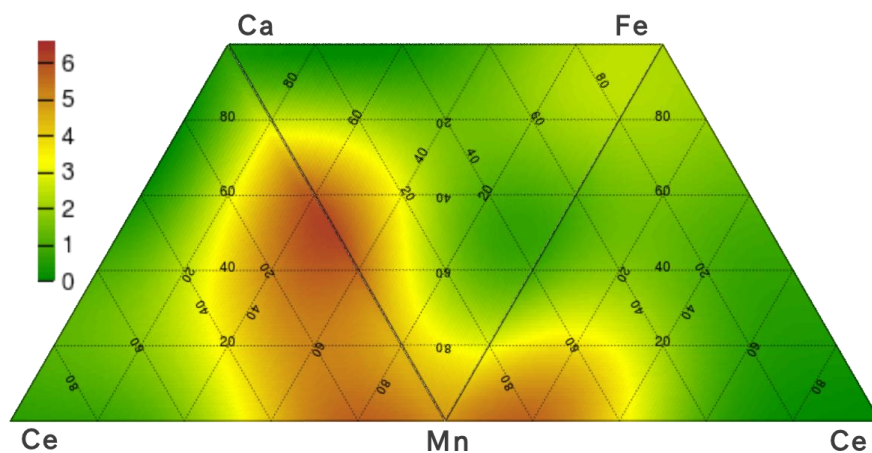
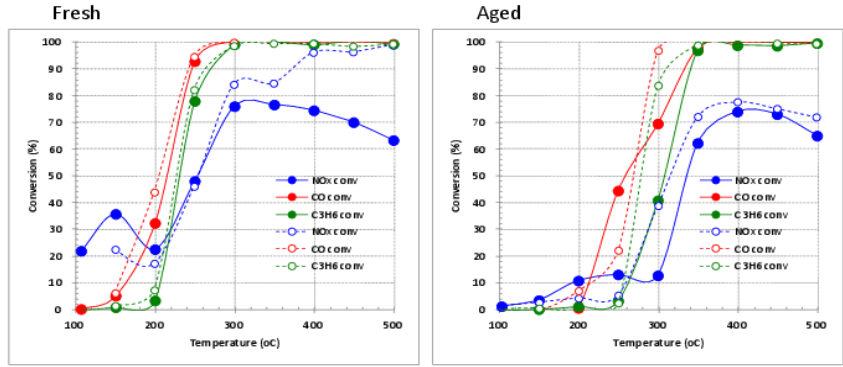


図 2-4-3-16 Ce-Ca-Mn-Fe 酸化物の OSC 能に対する組成の効果

(SDONR-01) 1Rh/Mn_{0.6}Ca_{0.4}O₂ + 2.5wt%Pd/Al₂O₃ (1:2)

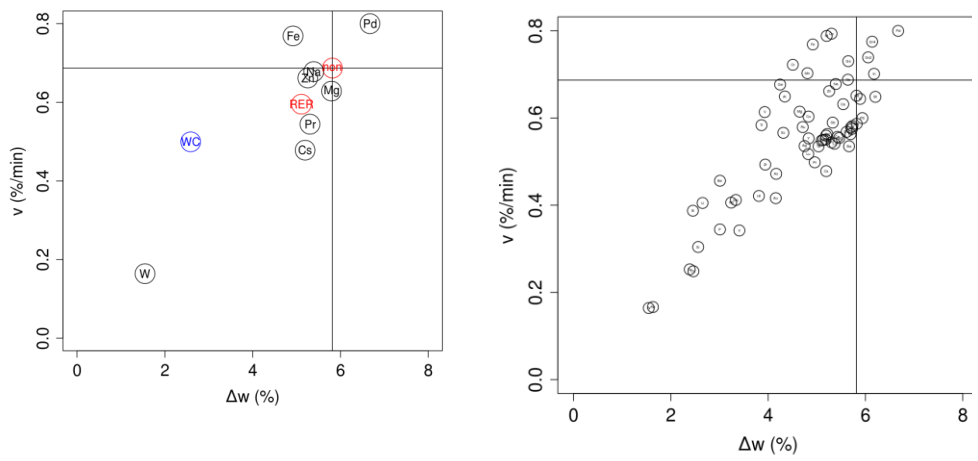


Fresh	NOx	CO	C ₃ H ₆	Aged	NOx	CO	C ₃ H ₆
活性指数	86	98	99	活性指数	90	97	90
				失活率(%)	28	20	26

白抜き-破線は基準触媒
 *活性指数: 基準触媒の活性を100
 *失活率: エージングによる活性低下率(基準触媒失活率: NOx 36%, CO 20%, C₃H₆ 19%)

図 2-4-3-17 CaMnO₃ の TWC 結果

さらに CaMnO₃ 酸化物の OSC 能を向上させる添加物を主成分分析-非線形回帰法で探索した。実験結果と推定結果を図 2-4-3-18 に示す。
 この結果より貴金属以外では Bi が有望と考え、実際に調製して ΔW を測定したところ、非セリア材料ながら、基準セリアの 300 倍以上の OSC 量を有していることを見出した(図 2-4-3-19)。



2-4-3-18 CaMnO₃ 酸化物への添加物探索 (左: 実験データ, 右: 推定結果)

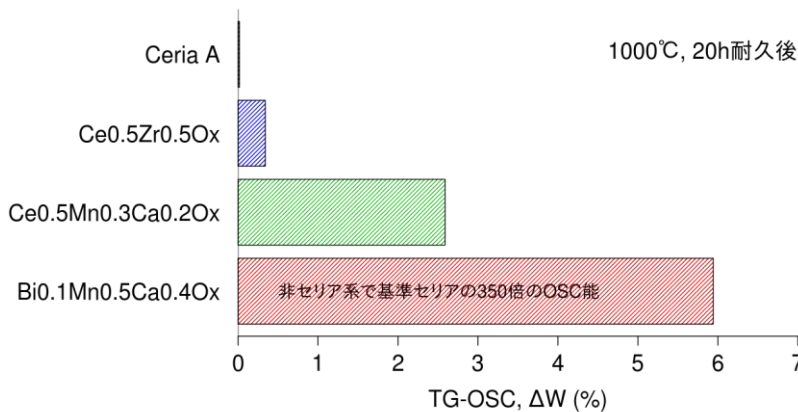


図 2-4-3-19 各種材料の OSC 能比較

4 結言

主成分分析-非線形回帰手法を用いてセリアジルコニア材料の性能向上を検討した結果、

1. Ce-Mn 系酸化物でセリア半減の可能性
2. Ca-Mn 系系酸化物でセリア 100%削減の可能性

を見出し、当初目標のセリア使用量 30%削減へ寄与することができた。本研究で用いた「9 元素のデータ→物性値主成分非線形回帰→組成最適化」というループを繰り返す手法が、有効であることが示された。

研究開発項目②-5-1 : サンプル性能評価

(産業技術総合研究所)

1 緒言

ガソリンエンジン車の排ガス浄化触媒には窒素酸化物 (NOx)、炭化水素 (HC)、一酸化炭素 (CO) を同時に除去する性能、すなわち三元触媒 (TWC) 性能が必要である。ガソリンエンジン車は、エンジンに導入された燃料の完全燃焼に必要な酸素を含む空気量 (理論空燃比) 付近で駆動するが、実際には短い周期で空気過剰 (Lean) 雰囲気と燃料過剰 (rich) 雰囲気が入れ替わっている。Lean 雰囲気では HC と CO が除去されやすいが NOx 除去率は低下する。Rich 雰囲気では酸素濃度が少ないために HC と CO は除去されにくい、NOx 除去率は高い。これらの問題を解決するために、酸素吸蔵能 (OSC) を有する CeO₂ が用いられる。CeO₂ は Lean 雰囲気では酸素を吸収し、rich 雰囲気では吸収した酸素を放出して HC、CO 除去に利用できるため、雰囲気変化による三元触媒性能の低下を抑制する働きがある。本節では、新規に開発される多数の触媒を同一評価条件によって比較し、高活性な触媒を見出すことを目的としてサンプル評価を行った。高活性触媒の選出に際しては、まず OSC 性能とほぼ理論空燃比での TWC 性能評価による基準触媒仕様の設定を行い、続いて、基準触媒の TWC 性能よりも優れた活性を有する触媒を探索した。

2 実験

OSC 能測定は、図 2-5-1-1 に示すガスおよび温度プロファイルに従って行った。サンプルは、0~2wt% 貴金属 (Rh, Pd, Pt) 担持 CeO₂ に対して測定を行い、貴金属を担持しない CeO₂ についても 2wt% Pd/Al₂O₃ を混合して測定を行った。CeO₂ は第一稀元素化学製 CeO₂ (A) を用いた。いずれのサンプルも、未処理サンプル (Fresh) とエージングサンプル (Aged) に対して測定を行った。エージング条件は 10%H₂O/air, 1000°C, 20 h とした。CeO₂ 60mg を含むサンプルを常圧固定床流通反応装置にセットし、500, 400, 300°C で 0.5% O₂/He と 1%CO/He を 5 分おきに交互に導入することで、ガス切り替え直後の生成ガス挙動から O₂ 吸蔵量および O₂ 放出速度を求めた。質量分析器で O₂ (m/z 32) と CO₂ (m/z 44) の濃度変化を測定することにより、吸蔵量は単位 CeO₂ 重量あたりの O₂ 吸蔵量、O₂ 放出速度は、CO 導入直後から 10 秒間の CO₂ 生成量から、時間重量あたりの酸素

放出速度を見積もった。

TWC 活性試験は、図 2-5-1-2 に示した 5 連触媒活性試験装置により測定を行った。60～150 mesh に整粒した触媒 60 mg を反応管にセットし、測定温度 500～150℃ (50℃ステップ)、反応ガス流量 250 ml/min、反応ガス組成 NO 500ppm, C3H6 400ppm, CO 0.5%, O2 0.5%, H2 0.1%, CO2 14%, H2O 10% (N2 希釈) (わずかにリーン) で行った。Fresh および OSC 測定と同じエージング条件で処理した Aged の両方の触媒を全てのサンプルに対して測定した。反応ガス中の O2 および H2 濃度を本プロジェクトで購入したマイクロガスクロにより測定し、毎回の活性試験において濃度がほぼ一定になるように反応ガス濃度設定を行った。生成ガスは多重反射型ガスセル装備 FT-IR により NOx, C3H6, CO 濃度を測定した。活性は NOx, C3H6, CO それぞれの転化率で表した。

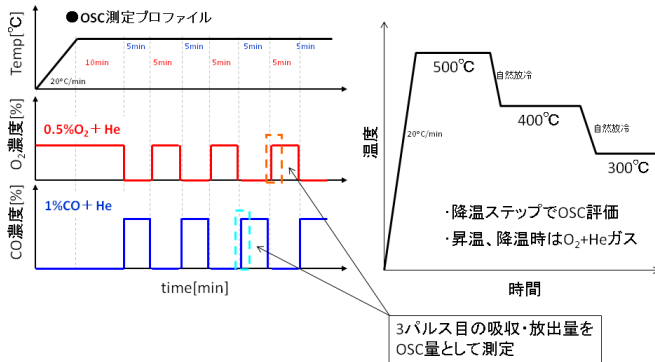


図 2-5-1-1 OSC 測定条件

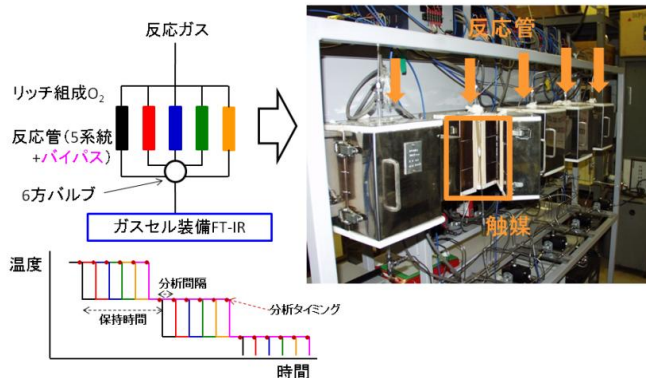


図 2-5-1-2 5 連活性試験装置

3 結果と考察

・基準触媒設定

CeO2 に担持する貴金属種および担持量を選定するために、Rh, Pd, Pt を各種担持量で CeO2 (A) に担持したサンプルの 500°C における OSC 測定結果を図 2-5-1-3 に示す。O2 吸収量については、Fresh サンプルは 1wt% 以下ではどの貴金属でも 0.5～0.6 mmol/g-CeO2 の値を示したが、2wt% では Rh 担持サンプルが Pd, Pt よりも高い値を示した。Aged サンプルでは Pt, Pd 担持サンプルがきわめて小さい吸収量を示したのに対して、Rh 担持サンプルは 1wt% 以上で 0.1 mmol/g-CeO2 の値を示した。O2 放出速度については、Fresh サンプル種による違いは少ないが、Aged サンプルでは Rh 担持サンプルが顕著に高い O2 放出速度を示した。これらの結果から、CeO2 に担持する貴金属種は Rh、担持量は 1wt% が最適と決定した。

次に、1wt% Rh/CeO2 と混合する触媒成分を見出すため、1～5wt% Pt もしくは Pd/Al2O3 を Al2O3:CeO2 = 2:1 (重量比) となるように 1wt% Rh/CeO2 と混合したものについて TWC 活性試験を行った。貴金属比は Pt (or Pd)/Rh = 2, 3, 4, 5 および 10 で行った。図 2-5-1-4 に Pd/Al2O3 混合 Aged サンプルの活性試験結果を示す。同じ担持量で比較した場合、NOx 転化率は Pt が Pd より高いが、CO および C3H6 転化率は Pd の方が高くなった。また、Pt/Al2O3 は Pd よりも副生成物が多く生成した。このことから、Pt よりも Pd の方が好ましいことがわかった。また、Pd の最適担持量は 2.5wt% (Pd/Rh =

5) となった。以上のことから、基準触媒組成は 1wt% Rh/CeO₂ + 2.5wt% Pd/Al₂O₃ (CeO₂:Al₂O₃=1:2) と決定した。

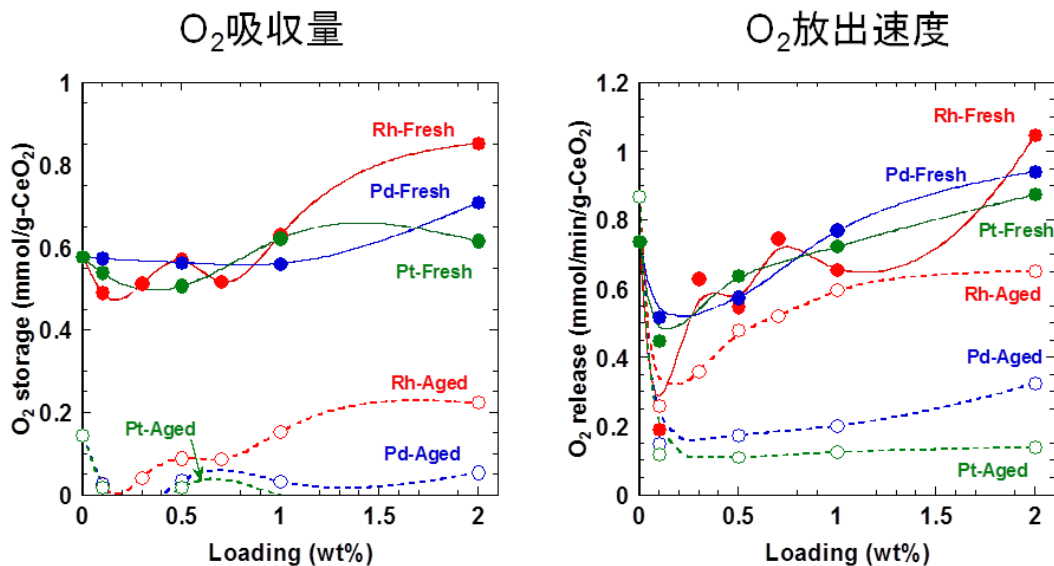


図 2-5-1-3 基準触媒 OSC 測定

・高活性触媒の選出

研究項目①で作製された新規触媒の TWC 活性試験を行い、高活性触媒の選出を行った。高活性触媒の選出に際して、(i) Aged サンプルの NO_x 転化率が基準触媒より高いこと、(ii) エージングによる活性低下が基準触媒より少ないこと、に着目した選定を行った。156 サンプルに対して Fresh および Aged 活性を測定した。

CeO₂ の改良による高活性化を目指した触媒では、CeO₂ の調製条件を検討することにより得られた触媒で、上記特性を満たす触媒が得られた。CeO₂ との固溶体形成が可能な Zr および Sn などの元素の添加によっても、基準触媒と同等の活性を示す触媒が得られた。また、遷移元素の添加やナノグラフト化による活性および耐久性向上効果は大きく、固溶体触媒よりも高い性能が得られた。非 CeO₂ 系の新規触媒では、ペロブスカイトや Mn-Ca 複合酸化物などで上記性能を満たす活性な触媒が得られた。

以上の高活性な触媒の選出により得られた、実機試験に使用する触媒ならびに実機試験は行わずとも有望な活性を示す触媒を次に列挙する。

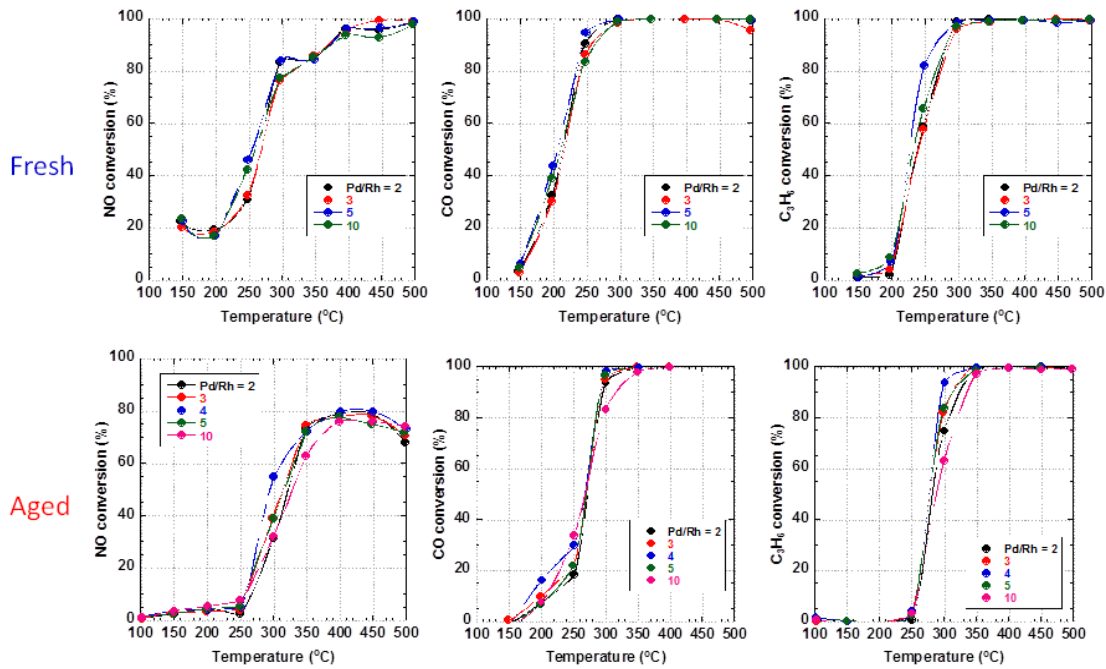


図 2-5-1-4 Pd/Al2O3 + 1wt% Rh/CeO2 (Aged) TWC 活性試験結果

実機評価用触媒		
NO.	CeO2触媒組成	改良点
WC-01	1.4wt%Rh/改良CeO2	調整法改良
WC-02	1.4wt%(Rh+Ru)/CeO2	遷移金属添加
WC-03	1.0wt%Rh/(CeO2+プロモーターA)	基準セリアにプロモーターA添加
WC-04	1.0wt%Rh/(CeO2+プロモーターB)	基準セリアにプロモーターB添加
WC-05	1.0wt%Rh/(CeO2+プロモーターC)	基準セリアにプロモーターC添加
WC-06	1.0wt%Rh/(CeO2+プロモーターD)	基準セリアにプロモーターD添加
WC-07	1.0wt%Rh/(CeO2+プロモーターE)	基準セリアにプロモーターE添加
WC-08	1.0wt%Rh/(CeO2+プロモーターF)	基準セリアにプロモーターF添加

今後有望な触媒	
触媒材料	改良点
M/CeO ₂	遷移金属添加
改良CeO ₂	調整法改良
複合化CeO ₂	遷移金属等のドーピング
CeO ₂ -Al ₂ O ₃	調整法改良
ペロブスカイト材	酸素イオン伝導体等の応用

ハニカム担持用に大量合成された実機試験用触媒について、ハニカム担持前の粉体に対して活性試験を行った。これにより、各触媒の大量合成による性能の変化が少ないことを確認した。

4 結言

本節では、基準触媒の選定および研究項目①で作製された新規触媒の TWC 活性試験による高活性触媒の選出を行った。基準触媒組成は 1wt% Rh/CeO₂ + 2.5wt% Pd/Al₂O₃ (CeO₂:Al₂O₃=1:2) と決定した。高活性触媒の選出では、Aged サンプルの NO_x 転化率が基準触媒より高く、エージングによる活性低下が少ない 8 サンプルを実機試験に使用する触媒として選んだ。また、基準触媒相当と考えられる 7 サンプルを今後の研究で期待できる触媒として選定した。本節において、基準触媒選定のための OSC 測定を 46 サンプル行うとともに、基準触媒選定+高活性触媒選出+ハニカムサンプル活性チェックによる TWC 活性試験を総数 193 サンプルについて行った。

研究開発項目②-5-2 : サンプル性能評価

(宮城県産業技術総合センター)

1 緒言

短期間で実用化の道筋を明らかにするためには、開発された材料を迅速に評価し、材料設計、材料調製のステージへフィードバックする体制を整えることが必要である。また、最終的に実車で用いるために必要な様々な特性をラボでいかに迅速に評価するか、ラボに於ける適正な評価方法そのものも研究課題であり開発する必要がある。

本節では、「実車によるモード走行評価」に近い評価を少量の新触媒で担うとともに各種有害物質についての検証を行うことを目的として、実排ガスによる小型ハニカム触媒性能評価システムを開発し、開発触媒の特性把握を行った結果について報告する。

2 実験

(1) 小型ハニカム触媒性能評価システムの開発

図 2-5-2-1 に開発した小型ハニカム触媒性能評価システムの構成を、図 2-5-2-2 にその外観写真を、表 2-5-2-1 に各構成装置の仕様概略について示す。

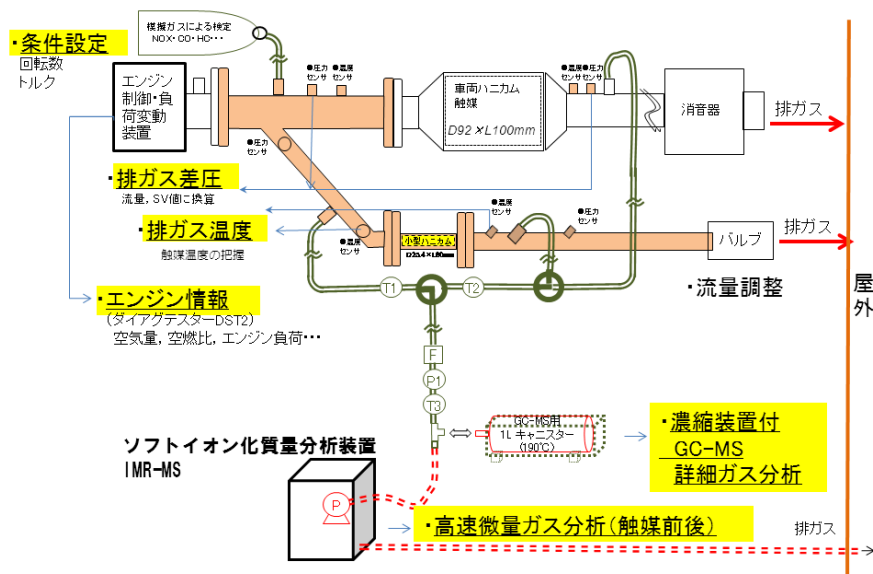


図 2-5-2-1 実排ガスによる小型ハニカム触媒性能評価システムの構成

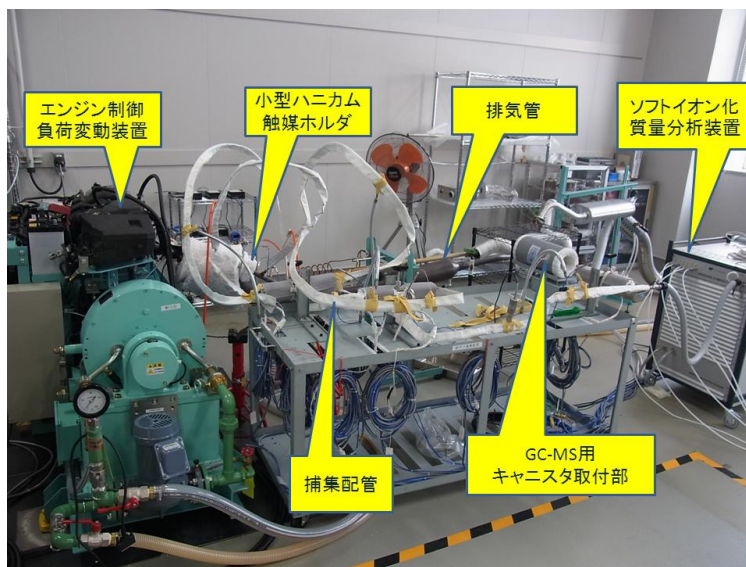


図 2-5-2-2 開発システムの外観

表 2-5-2-1 開発システムを構成する主要装置の仕様概要

	メーカー・型式	主な仕様
エンジン負荷変動装置	東京メーター(株) GWE-110/150R	エンジン:1NZ-FE(トヨタ自動車 アリオン搭載)
ソフトイオン化質量分析装置 (IMR-MS)	V&F社(ALPHA M.O.S社) AirsenseCompact	必要ガス流量:100ml/min 検出感度:ppbレンジ 応答速度:10msec
濃縮装置付ガスクロマトグラ フ分析装置(GC-MS)	Entech社 7100A AgilentTechnologies社 7890A, 5975C	3ステージ濃縮 検出器 MS 及び FID 2基搭載
捕集配管	西川計測(株)	Entech社製 シロナイト処理 配管
ダイアグテスター	(株)デンソー DST-2	トヨタ車用故障診断ソフト

評価対象の小型ハニカムは車両ハニカムの 1/20 以下の容積であることから、試験ガス流量も同比率で減らし、SV 値を実車両での使用範囲と同程度に調整した評価を行う必要がある。本システムでは、エンジン負荷変動装置で発生させた排気ガスを分岐管によって車両排気管と小型排気管の2つの流路に分け、さらに小型排気管後端のバルブ開度により流量を調整できる構造とし、小型排気管の途中に小型ハニカム状触媒を挿入したフランジ管を取り付け、その前後の排ガス濃度を調べることで触媒特性評価を行う構成としている。排ガスは排気管に接続した捕集配管をとおして吸引され、ソフトイオン化質量分析装置 (IMR-MS) によるリアルタイム分析を行う。また、捕集配管を分岐して排ガスをキャニスターに捕集することで濃縮装置付きガスクロマトグラフ質量分析装置による詳細な炭化水素類の分析を行うことが出来る。なお、排気管には熱電対と差圧計が設置されており、排ガスの温度と流量をモニタリングできる。触媒ホルダの周囲には、断熱を狙って厚手のセラミックファイバーシートを巻きつけ、排ガス温度の低下を軽減させた。また、エンジンスロットルおよび動力計負荷を設定することで各種運転条件下での排ガス状態を実現し、ダイアグテスターにより ECU からのエンジン情報をモニタリング及び記録できる。

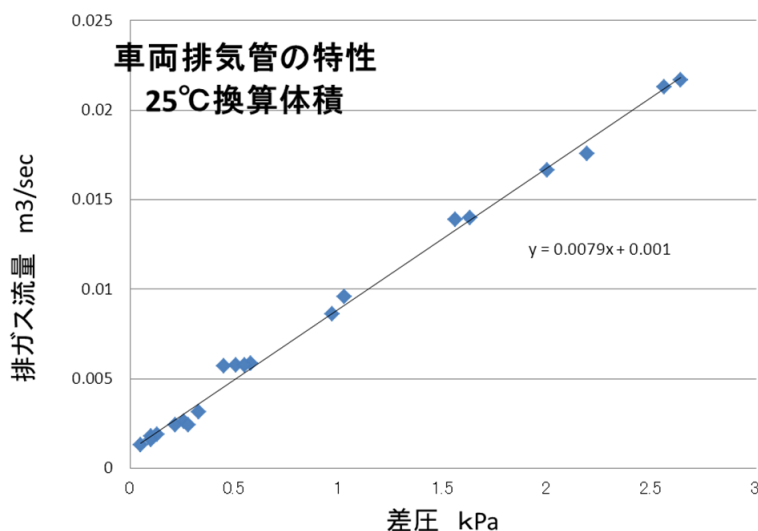


図 2-5-2-3 差圧実測値と排ガス流量の関係

図 2-5-2-3 は、車両ハニカム触媒前後の差圧と排ガス流量の関係を実験で調べた結果で、ほぼ直線で近似できることが分かった。実験では、この関係を用いて小型ハニカムへの分岐流量を小型ハニカム後端のバルブ開度により調整し、所定の SV 値に設定した。

なお、エンジンからの排ガス発生量は、燃料をオクタンのみで簡略化した燃焼反応式に基づいて吸入空気量の実測値から計算して求めている。

(2) 小型ハニカム触媒

小型ハニカムは、サイズφ25.4×60 mm、仕様 4.3 ミル、600 セル/インチの NGK 製である。表 2-5-2-2 に評価対象小型ハニカム触媒の組成等の仕様について示す。なお、表中の記号は後述の評価結果グラフの凡例と対応している。

表 2-5-2-2 評価対象触媒の仕様

記号	内容	組成
WC-00	基準触媒	2.5wt%Pd/γ-Al ₂ O ₃ : 1.0wt%Rh/CeO ₂ = 2 : 1
014	東北大学 阿尻研究室	2.5wt%Pd/γ-Al ₂ O ₃ : 1.0wt%Rh/CeO ₂ (超臨界) = 2 : 1 触媒コート量 177.0 g/L F08L Lot 014
016	東北大学 高村研究室	2.5wt%Pd/γ-Al ₂ O ₃ : 1.0wt%Rh/Ba _{0.5} Sr _{0.5} Co _{0.8} Fe _{0.2} O _{3-d} = 2 : 1 触媒コート量 189.8 g/L F08L Lot 016
018	東北大学 佐藤研究室	2.5wt%Pd/γ-Al ₂ O ₃ : 1.0wt%Rh/Ce _{0.5} Zr _{0.4} Sn _{0.1} O ₂ = 2 : 1 触媒コート量 175.9 g/L F08L Lot 018
WC-01	RER	RE-4 CO変成用改良セリア
WC-02	名古屋大学 薩摩研究室	NDS-03(Ru1%) Rh/CeO ₂ +Ru/CeO ₂

(3) エンジン運転条件の設定

実車走行に近いエンジン運転条件として、表 2-5-2-3 に示す設定で実験を行った。エンジン回転数、トルク（動力計負荷）を各 3 水準設定し、各開発触媒を 5 条件で比較した。エンジンスタートから各条件設定、安定化、サンプリングを 5 条件下で連続して行い、終了までの所要時間は約 2 時間で、この実験を 1 セットとして各触媒で 3 セット実施し、再現性についての確認を行った。なお、一連の実験を通じてダイアグテスターによる実空燃比λの実測値は 0.99 ~ 1.01 の範囲であった。

表 2-5-2-3 エンジン運転条件

回轉数 rpm トルク N・m	回轉数 rpm		
	1500	2000	3000
50	△	◎	△
75	◎	◎	◎
100	△	◎	△

(注記) ◎ 全触媒で測定、△ 一部触媒でのみ測定

(4) 排ガスの流量（SV 値）と温度

本システムでは、実車同様に運転条件等の変化に伴って排ガス温度及び排ガス流量が変化する。排ガスの流量設定は、エンジン運転条件が 2000rpm-75Nm の時に SV 値が約

80,000 になるようにバルブ開度を調整し、その後の実験条件下ではそのままバルブ開度を固定して実験を実施した。表 2-5-2-4 に各運転条件下での排ガス温度と SV 値の実測値を示す。

表 2-5-2-4 各運転条件下での排ガス温度と SV 値

●排ガス温度(触媒上流)℃ ※ 実験10回の実測平均値、30℃程度のバラつき有り

トルクN・m \ 回転数 rpm	1500	2000	3000
50	450	530	610
75	520	540	660
100	580	660	700

●SV値 ※ 吸入空気量、差圧の実測値から流量算出、5000程度のバラつき有り。バルブ設定は、2000rpm-75Nmの条件下でSV値:80,000に流量調整

トルクN・m \ 回転数 rpm	1500	2000	3000
50	40,000	60,000	90,000
75	60,000	80,000	120,000
100	80,000	110,000	150,000

3. 結果と考察

(1) リアルタイム微量成分分析

図 2-5-2-4 にリアルタイム微量成分分析結果として、IMR-MS によるガス濃度分析結果の一例を示す。各ガス濃度が時間経過に伴って微小に変動し、また、バルブ切替により捕集位置を触媒前から触媒後に変えた時にガス濃度が即時に変化している様子を捉えていることが分かる。図 2-5-2-4 は一例であるが、すべての実験条件下において同様のデータ収集を行っており、後述の排ガスの転化率は、各収集データにおける触媒前後の各 4 分間の平均値の比から算出している。なお、収集データを東北大学宮本研究室に提供し、マルチスケールシミュレータによる拡散解析の実測データとして活用された。

(2) 各エンジン運転条件下における転化率

エンジントルク固定(75N・m)で回転数を 1500rpm、2000rpm、3000rpm に変化させた場合について、各触媒の NOx、CO、トルエン、プロピレンの転化率の結果を図 2-5-2-5 に示す。なお、IMR-MS では分子量が等しい物質の総和が測定値として表示されるため、トルエン(分子量 92)、プロピレン(分子量 42)の測定値にはトルエン・プロピレンと同じ分子量の炭化水素類も含まれている。そのためトルエン*及びプロピレン*と表記し、GC におけるトルエン及びプロピレンの測定結果と区別する。

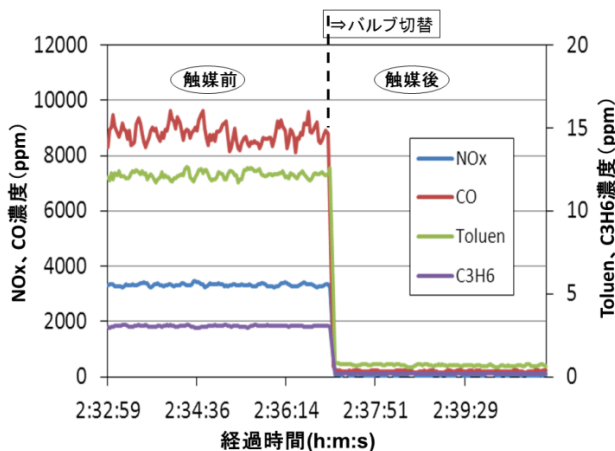


図 2-5-2-4 リアルタイム微量成分分析結果—IMR-MS によるサンプリング事例 (2000rpm-75Nm) —

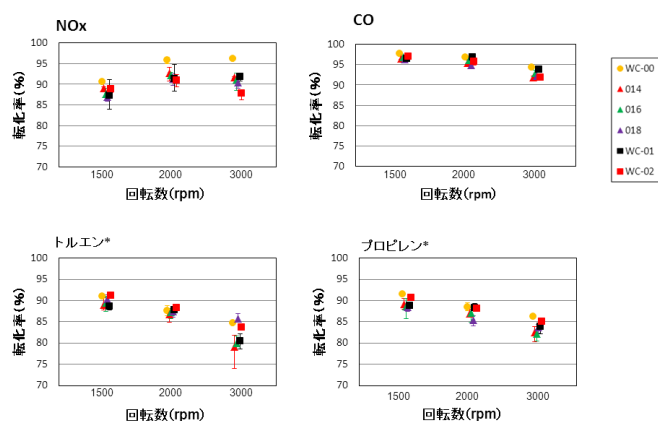


図 2-5-2-5 各触媒の転化率（トルク 75N・m で回転数を変化）

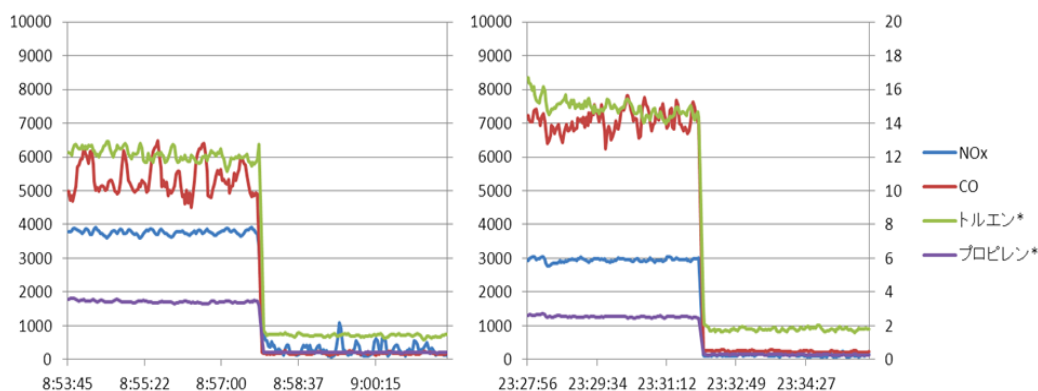


図 2-5-2-6 触媒後の NOx 濃度変化 — (左) NOx 転化率：高, (右) NOx 転化率：低—

NOx については、2000rpm ではいずれの触媒についても 90%以上の転化率であったが、1500rpm 及び 3000rpm では触媒によって転化率がおよそ 83~98%の範囲となっている。図 2-5-2-6 (左)に見られるように触媒後のガス濃度がある一定の周期性をもって上下している場合に転化率も低くなる傾向が見られた。逆に図 2-5-2-6 (右)に見られるように触媒後のガス濃度が一定でかつ低い場合に転化率は高くなる傾向が見られた。

CO については、いずれの回転数においても転化率は 90%以上を示しており、各触媒の転化率の差はほとんど見られなかった。

炭化水素類（トルエン*、プロピレン*）については、1500rpm 及び 2000rpm においては触媒間でそれほど転化率の差は見られなかった。また、3000rpm ではプロピレン*に対してトルエン*の転化率は若干低い結果となった。

次に、エンジン回転数を固定(2000rpm)でトルクを 50N・m、75N・m、100N・m に変化させた場合について、各触媒の NOx、CO、トルエン*、プロピレン*の転化率を調べた結果を図 2-5-2-7 に示す。NOx については、50 N・m においては、転化率 85%前後の触媒と、転化率 90%以上の触媒に分かれる結果となった。75 N・m においては各触媒間の転化率の差は縮小し、100 N・m においては一部を除き触媒間での転化率の差は見られなかった。CO については、50 N・m 及び 75 N・m における転化率は 95%以上を示しているが、100 N・m においては 85~92%と転化率の減少が見られた。各触媒の転化率の差は一部を除きほとんど見られなかった。炭化水素類については、トルクの上昇に伴い転化率が減少する傾向が見られた。

今回の結果より、触媒 016 は非セリア系であるにもかかわらず、他の開発触媒に対して同等の性能を示していたことは特筆すべきことであると思われる。

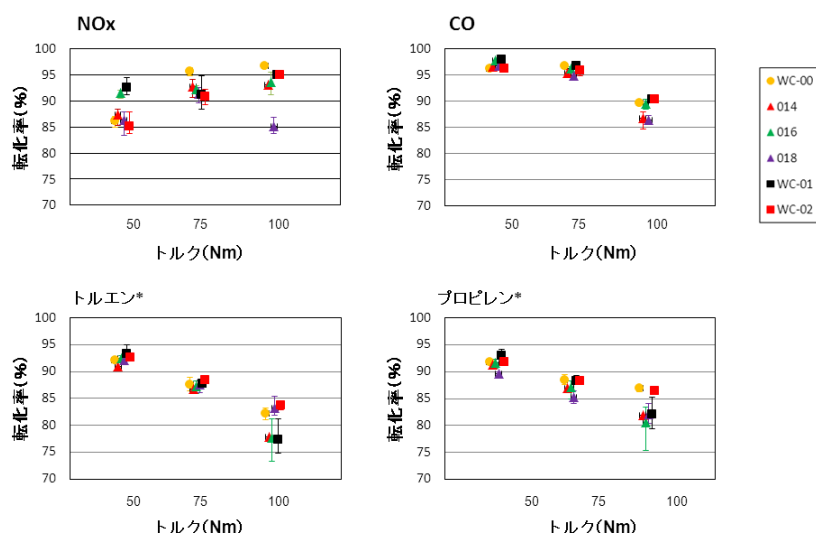


図 2-5-2-7 各触媒の転化率（回転数 2000rpm でトルクを変化）

(3) 炭化水素類の高精度分析

各実験において IMR-MS によるサンプリングと平行して、GC により触媒前後の排ガスを採取し、約 50 種の炭化水素のデータを取得した。排ガスのサンプリング条件は、エンジン回転数：2000rpm，トルク値：75Nm の運転条件下で、触媒前後で 2 分間ずつ採取した。主要な炭化水素類の転化率について、各触媒で比較した結果を図 2-5-2-8 に示す。全体的な傾向としては、C2～C4 の炭化水素類の転化率が高いのに対して、C5～C10 の炭化水素類の転化率が低くなる傾向が見られた。

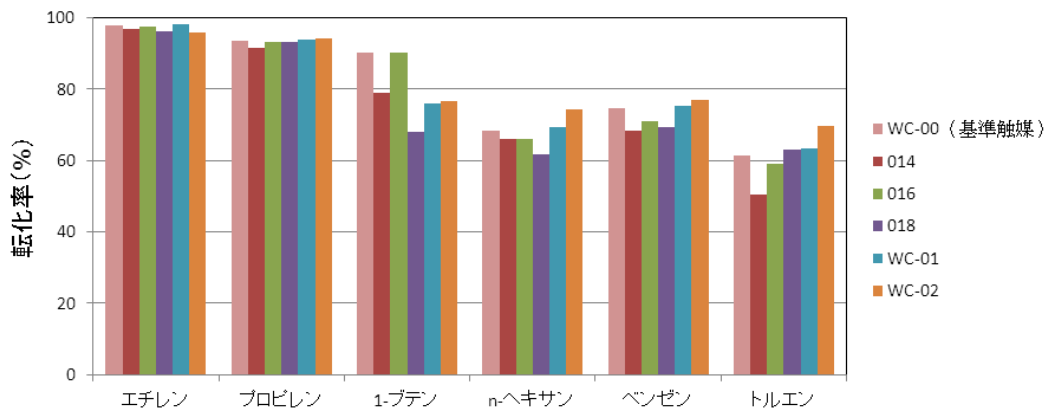


図 2-5-2-8 炭化水素類の GC 分析結果（2000rpm - 75N・m）

4. 結言

(1) エンジン制御負荷変動装置，ソフトイオン化質量分析装置（IMR-MS），濃縮装置付きガスクロマトグラフ質量分析装置（GC-MS），触媒ホルダ管，排ガス捕集配管，ダイアグテスター等で構成される「実排ガスによる小型ハニカム触媒性能評価システム」を開発した。

(2) 開発触媒の評価実験を繰り返し実施し，転化率のばらつきが小さく再現性のある結果を得ることが出来た。また，実排出ガスに含まれる個々の炭化水素（約 50 種）に対する開発触媒の有害物質浄化能に関する高精度分析結果を得た。

(3) 拡散解析に資する実測データを東北大学宮本研究室に提供し，シミュレーション解析に貢献することが出来た。

1 緒言

本プロジェクトにおいては、短期間で触媒の探索から実車で必要な性能の評価までを行う計画となっている。このためには、最終的に実車で用いるために必要な様々な特性をラボでいかに迅速に評価するか、ラボに於ける適正な評価方法そのものも研究課題であり開発する必要がある。従来の触媒研究では官・学のラボにおける評価が実車で評価と必ずしも一致せずに開発の速やかな進展の妨げとなっていた。当プロジェクトではこのボトルネックを解消するために、実使用条件を加味した材料評価の共通の指針を見出し、ラボスケールの試作触媒から、実車による性能評価による最終試験を迅速に実施できる体制を確立する必要がある。

本タスクは、産業技術総合研究所所有のシャシダイナモシステムを活用し、実車のモード試験により、i) プロジェクトで開発する触媒の評価指針に資するデータの取得、ii) 開発触媒の最終的な実車で評価による実用化への課題の明確化を目的としている。

第一の目的を具現化する方法として、現状のセリア含有触媒による排出ガス浄化特性を、試験車両に付属の触媒（旧触媒：90000km 走行）及び新品 2 サンプルの合計 3 サンプルを対象として、10-15 モード、JC08 モードで走行試験を実施する。温度特性、排出ガス組成などの触媒の基礎特性評価に有益なデータを、触媒の上流と下流で時系列測定することによって、過渡現象を含んださまざまな排出ガス条件での既存触媒の役割等を明確化、触媒特性の評価手法に資するデータを提供した。

第二の目的を具現化する方法として、プロジェクトで試作された特に有望な触媒に対して、実車サイズのカムカム状触媒を対象として、実車を用いたモード試験により実使用条件下での評価を行う。具体的には運転条件と時系列で測定された浄化率から、各触媒のメリットとなる特性に注目し、その評価を行った。

2 実験

(1) 試験装置および測定方法

実験には、産業技術総合研究所の所有するシャシダイナモ装置（HORIBA：LDV-48-86-125HP-AC）に、自動車排出ガステストシステム（HORIBA：VETS-9000PC）およびドライブシャフトシステム（CRSD-7000）を導入し、最新の評価モードである JC08 モードに対応させて使用した。試験用車両は、HONDA の Fit（DBA-GE6：無段変速オートマチック、エンジン型式：L13A、排気量 1339 c c）を使用した。試験用車両には、エンジン直下の触媒と、床下にもう 1 つの触媒が装備されている。既存触媒ではそれぞれの触媒の前後に加え、直下触媒の前と床下触媒の後で全浄化性能を計測した。（図 2-5-3-1 参照）また、本プロジェクトで開発された触媒においては、直下触媒での性能評価とし、その前後で排出ガスをサンプリングした。排出ガスの計測には 2 台の排出ガス分析装置（HORIBA：MEXA-9100DEGR、HORIBA：OBS-2200）を用い、CO、THC、NO_x の濃度を 0.1 秒刻みで計測・記録した。総合的な触媒の性能の指標として、触媒の前後 CO、THC、NO_x の濃度を時間で積分した値の低減率を浄化率として扱うこととした。また、時系列的な濃度履歴も触媒の特性を議論する上で用いる。試験中の状況を図 2-5-3-2 に、排気管とサンプリング位置、センサ位置を示した写真を図 2-5-3-3 に示す。

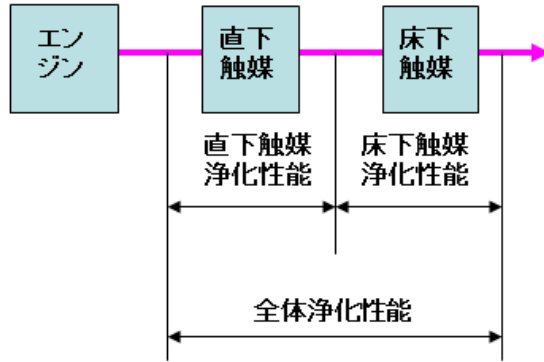


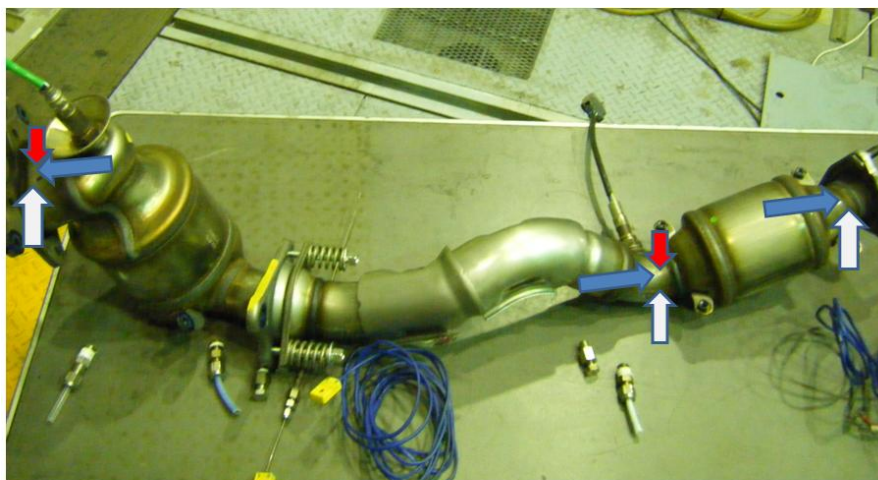
図 2-5-3-1 計測ポイント概要



図 2-5-3-2 試験状況の概要

(2) 既存触媒評価試験内容

試験には、既存触媒として試験車両(Fit)に既設の触媒と、新品の触媒を 2 組購入し、これの性能評価を実施した。既設の触媒は一般走行 90000km 経過済みのため、以降、劣化触媒と称する。性能評価時の基準車速と実車速の比較を図 2-5-3-4 に示す。今回の試験には実験の再現性を確保するため、プロのドライバーに走行を依頼しており、両者に違いはほぼないことがわかる。試験は、60 分の定速走行を 30 分行った後、10 分後に JC08 モード走行を開始し、触媒性能を計測した。続けて JC08 モードを計測する場合は、10 分間の間隔を置いた後計測し、それ以上の時間が経過する場合は、60 分の定速走行を行った後に、モード走行試験を実施した。



白⇒メス1/4-(3ヶ所)ガスポート(オス供給)
 赤⇒メス1/8-(2ヶ所)温度センサー(オス供給)
 青⇒ネジ付台座(3ヶ所) O2センサー

既設の触媒(9000km走行後)1個と、
 新品の触媒2個の性能を評価

図 2-5-3-3 サンプリング位置、センサ設置位置写真

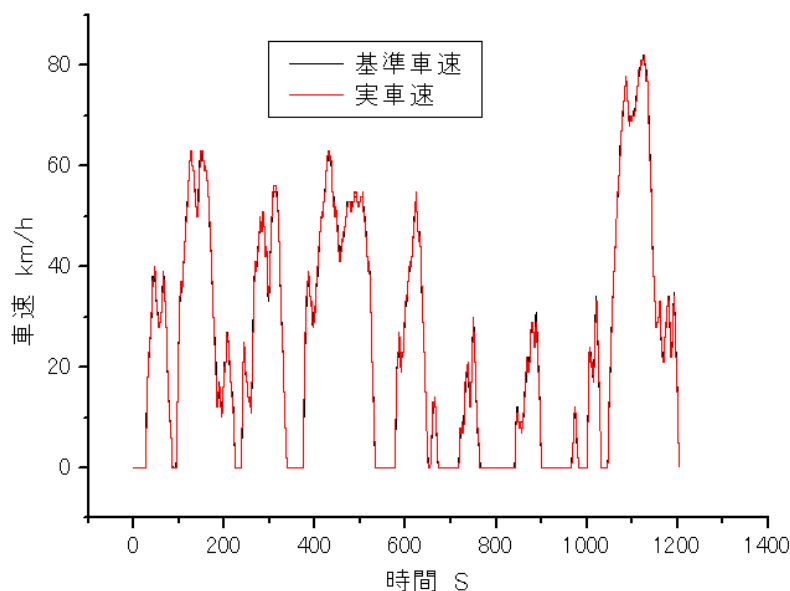


図 2-5-3-4 JC08 モード走行時の基準車速と実車速

(3) 新開発触媒評価試験内容

本プロジェクトで開発した触媒の最終的な評価及び課題を抽出することを目的として、新開発した触媒を実車に搭載し、JC08 モードにより排出ガス浄化試験を実施した。触媒は、今回の基準となる基準触媒(WC00)と、第一スクリーニングにより第二回成果報告会(11月29日開催)の時点で性能が高いと評価された8つの触媒(WC01~WC08)の9種類を用いた。それぞれの仕様を以下とした。また、触媒の組成を表1に示す。基準触媒以外は、セリウムの量为目标とする30%低減させている。よって、基準触媒に対して同程度の性能が発揮されれば実車評価においても30%低減を達成したことになる。

表 2-5-3-1 新開発触媒組成

NO.	CeO ₂ 触媒組成	WC量	CeO ₂ 量	貴金属量
WC-00	1.0wt%Rh/基準CeO ₂	60g/L	1(基準)	1(基準)
WC-01	1.4wt%Rh/改良CeO ₂	42g/L	0.7	1
WC-02	1.4wt%(Rh+Ru)/CeO ₂	42g/L	0.7	1
WC-03	1.0wt%Rh/(CeO ₂ +プロモーターA)	60g/L	0.7	1
WC-04	1.0wt%Rh/(CeO ₂ +プロモーターB)	60g/L	0.7	1
WC-05	1.0wt%Rh/(CeO ₂ +プロモーターC)	60g/L	0.7	1
WC-06	1.0wt%Rh/(CeO ₂ +プロモーターD)	60g/L	0.7	1
WC-07	1.0wt%Rh/(CeO ₂ +プロモーターE)	60g/L	0.7	1
WC-08	1.0wt%Rh/(CeO ₂ +プロモーターF)	60g/L	0.7	1

・ ハニカム仕様 (08M 1.3L Fit 2WD J仕様)

○ Φ105.7mm×81.2mm=0.71L

○ 600セル/4.3ミル (NGK製)

・ 試験用触媒仕様

○ CeO₂量は基準触媒の70%

○ 貴金属量はすべて固定

○ Al₂O₃は2.5wt%Pd/Al₂O₃で全て固定

○ Al₂O₃のW/C量は120g/Lで全て固定

3 結果と考察

(1) 既存触媒評価試験結果

既存触媒性能計測時の直下触媒前の排出ガス温度履歴を図 2-5-3-5 に示す。エンジンストップ防止制御により一部アイドリング時に温度が違うケースがあるが、それ以外は、ほぼ同じ温度履歴となっていることがわかる。同じく、直下触媒前の排出ガス中に含まれる NO_x 濃度の履歴を図 2-5-3-6 に示す。状況を詳細に把握するため、測定開始から 300 秒までとし、時間軸を引き延ばしている。温度履歴ほどの一致は見られないが、ほぼ同様の挙動となっていることがわかる。図 2-5-3-7 に直下触媒前に取り付け直挿型の酸素濃度計 (空気過剰率計: HORIBA: MEXA720NO_x) の測定値と、直下触媒前の排出ガス分析計の O₂、THC、CO から予測した空気過剰率の比較を示す。通常の試験においては、触媒の酸素吸蔵状態を把握するため、直挿型の酸素濃度計は酸素を計測している。このため、計測値から空気過剰率を予測することが必要となる。排出ガス分析計では、サンプリングラインにより排出ガスを吸引しているため、直挿型で計測した空気過剰率に対して時間遅れが発生するため、本図では 4.5 秒の時間遅れを考慮して表示している。また、サンプリング管内部で混合が起こるため、スパイク状に値が変化した場合、絶対値のずれがあるが、これを除けば、よく一致していることがわかる。図において、急激に空気過剰率が急増する時間帯があるが、これは、減速時に燃料の供給が停止され、空気がそのまま排気された状況を示している。この時に、急激に触媒が冷やされ、浄化性能に影響をおよぼす。

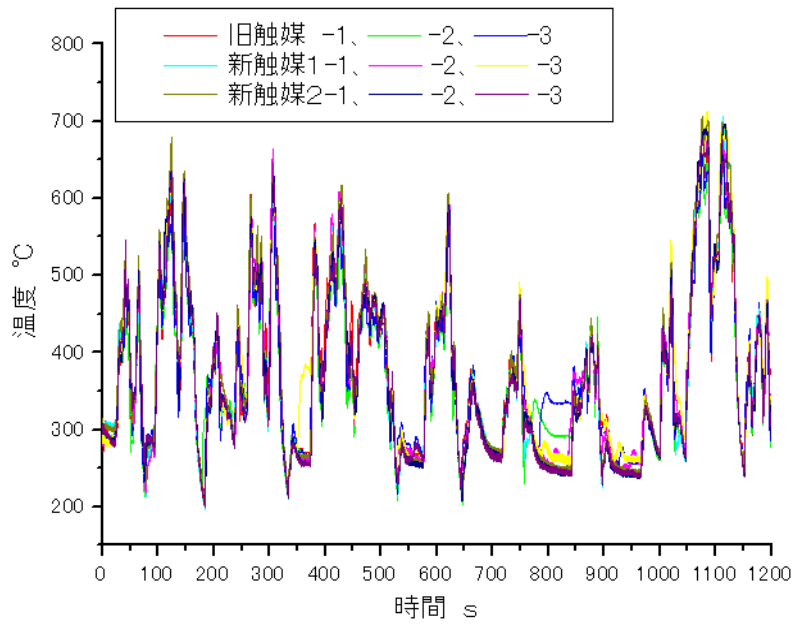


図 2-5-3-5 既存触媒走行時の直下触媒前排ガス温度履歴

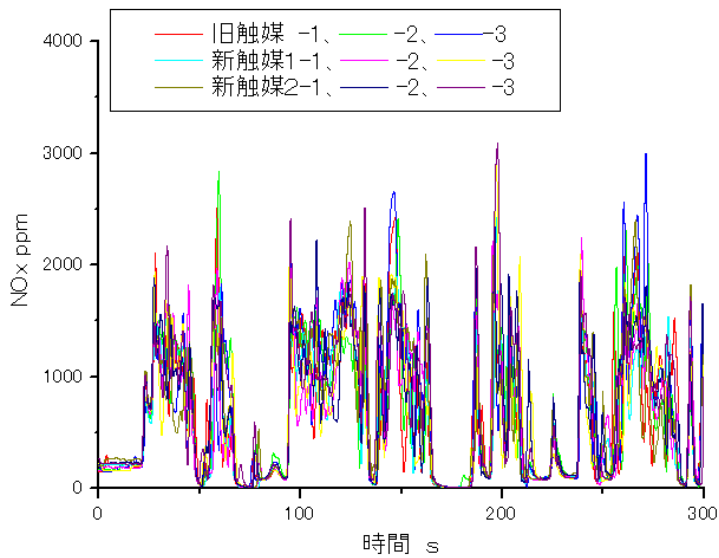


図 2-5-3-6 既存触媒走行時の直下触媒前排 NOx 濃度履歴

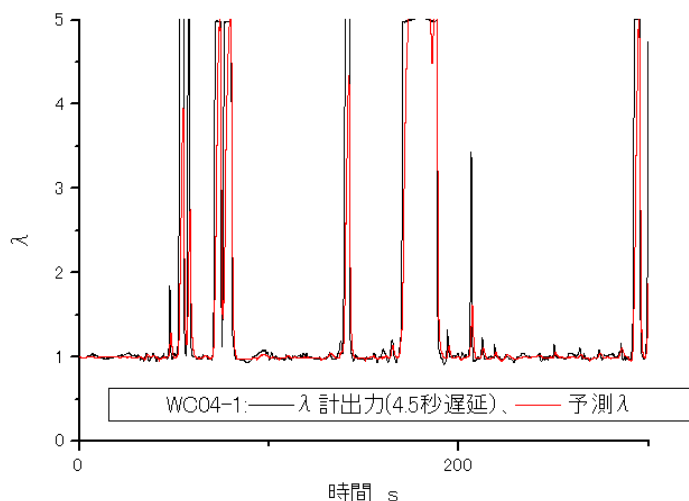


図 2-5-3-7 空気過剰率 (λ) 計出力と予測空気過剰率の比較

図 2-5-3-8 に劣化触媒試験時の触媒前後での NO_x 濃度履歴を車速、触媒前温度、空気過剰率と共に示す。空気過剰率については、排出ガス分析計の測定値より予測した値を用いた。触媒前の排出ガス (図中 NO_{xin}) は、加速時に急激に増加し、減速時に減少することがわかる。触媒後の NO_x については、始動時の触媒が十分あつまっていない時間帯、減速後のアイドリング状態から加速を始めた時間帯に排出されていることがわかる。これは、減速時に低温の空気により、温度が低下するとともにセリウムが酸素を飽和まで吸蔵し、アイドリングで触媒温度が十分上がっていない状態で、加速により高濃度の NO_x を浄化しきれないため排出されていると思われる。また、1000 秒を超えた時間帯からは、高速走行条件となっており、触媒にとっては排出ガスの処理量が増加し、SV 的に厳しい条件となる。

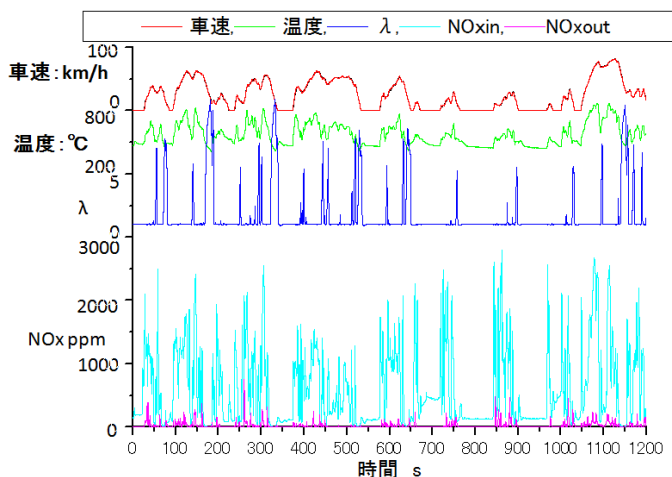


図 2-5-3-8 劣化触媒試験時の NO_x 浄化状況

図 2-5-3-9 に劣化触媒試験時の触媒前後での THC 濃度履歴を図 8 同様に示す。触媒前の THC については、加速時や高速走行時を除いて全体的に高濃度で検出され、特にアイドリング時に顕著に排出されている。触媒後については、ほぼ浄化されているが、始動時および減速後にアイドリング状態に移行する時間帯に検出されている。これは、触媒の温度が十分でないときの排出が顕著であると考えられる。

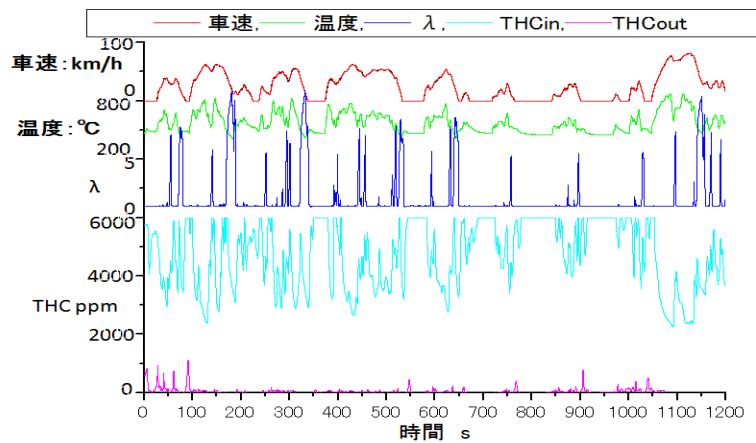


図 2-5-3-9 劣化触媒試験時の THC 浄化状況

図 2-5-3-10 に劣化触媒の JC08 モードでの NOx の浄化率の結果を示す。直下触媒での浄化性能は 95%以上、床下触媒でも 85%から 92%程度、全浄化性能では 98%以上であった。同じく図 2-5-3-11 に新品の触媒での結果を示す。図 2-5-3-10 同様高い浄化性能となっていることがわかる。さらに、図 2-5-3-12 において劣化触媒と新品の触媒の比較を行った。図からわかるように、9 万 km の走行を経験した触媒であってもその浄化性能はほぼ低下していないことがわかる。本プロジェクトにおいては、水蒸気を含む 1000℃の雰囲気の中でエージングを実施しており、触媒にとっては厳しい試験条件であるが、このような耐久性が自動車用触媒では求められるために設定されている。

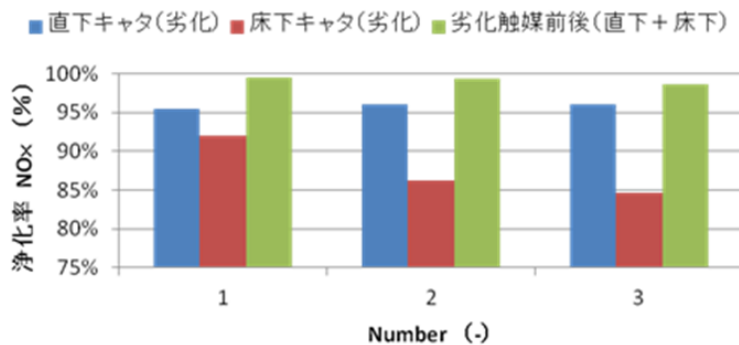


図 2-5-3-10 劣化触媒浄化率比較 (直下、床下、全浄化性能)

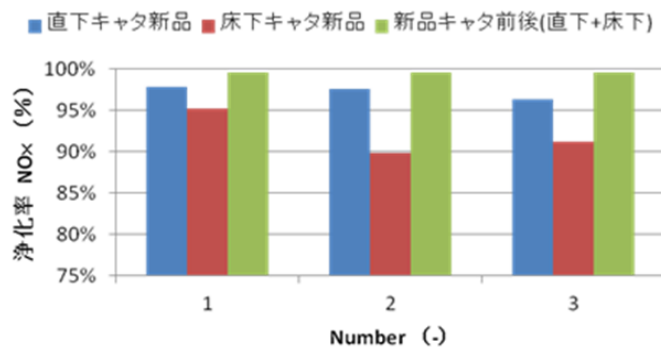


図 2-5-3-11 新品触媒浄化率比較 (直下、床下、全浄化性能)

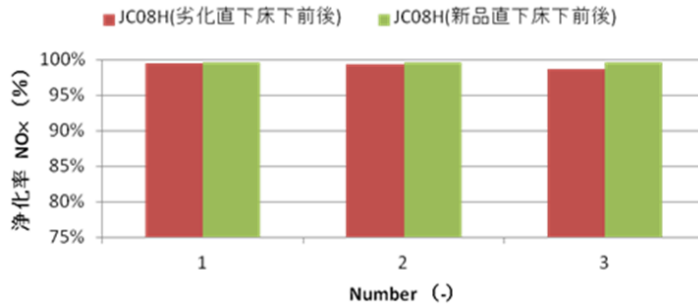


図 2-5-3-12 劣化・新品触媒浄化率比較 (全浄化性能)

図 2-5-3-13 に JC08 モード走行時の直下触媒前後での酸素濃度の履歴を示す。触媒は劣化触媒を使用している。図からわかるように、燃料が供給され空気がそのまま排気される場合を除き、細かな酸素分が触媒後にはほとんどなくなっていることがわかる。これは、未燃焼成分を燃焼させ酸素が消費されることと共に、余分な酸素をセリウムが吸蔵していると考えられる。

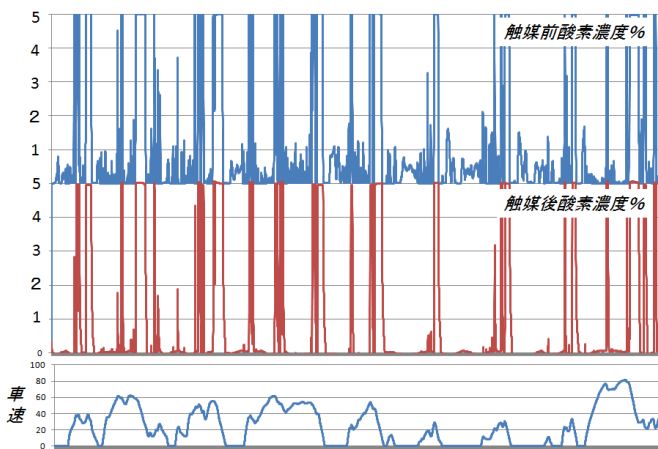


図 2-5-3-13 JC08 走行時の劣化触媒前後での酸素濃度

図 2-5-3-14 に、JC08 モード走行時の直下触媒後の酸素濃度、NOx 濃度、THC 濃度を示す。始動時の触媒が十分高温になっていない時間帯では、NOx、THC ともに排出がみられる。また、モードの後半に顕著にみられるが、加速時に NOx、減速時に酸素濃度が、減速からアイドリングに移行した時間帯に THC が多く検出されることがわかる。

上記のように、JC08 モード走行により、既存触媒前後の排出ガスをリアルタイムで計測し、その性能特性を把握した。

(2) 新開発触媒評価試験

図 2-3-5-15 に試験時の温度履歴を示す。既存触媒の試験時と同様、アイドリング時の制御のあるなしを除き、どのケースもほぼ同じ温度履歴となっていることがわかる。図 2-5-3-16、2-5-3-17 に触媒前の NOx 濃度履歴を示す。図 2-5-3-16 は若干読み取りにくいですが、アイドリングの違いを除くと、ほぼ同様の挙動を示していることがわかる。より詳細が時間軸を引き延ばした図 2-5-3-17 によってわかる。この図からは発生量の絶対値は違いがあるが、発生領域についてはほぼ一致していることが読み取れる。

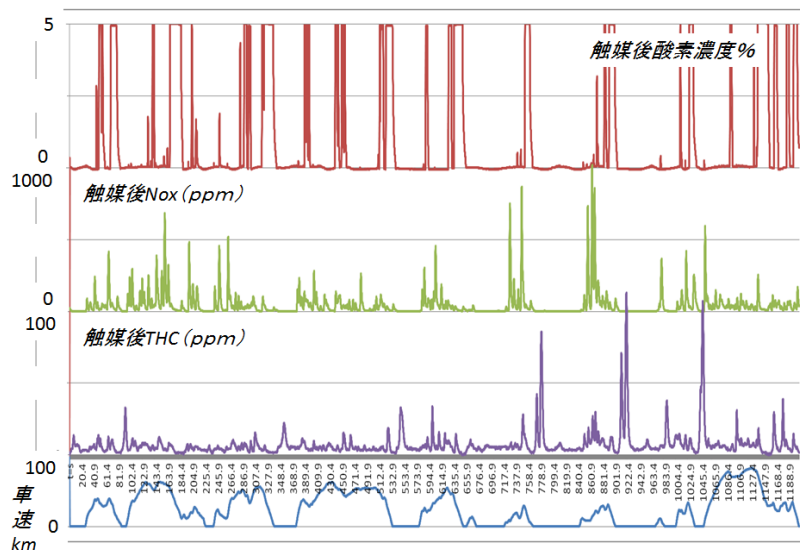


図 2-5-3-14 JC08 走行時の劣化触媒後の酸素、NO_x、THC 濃度

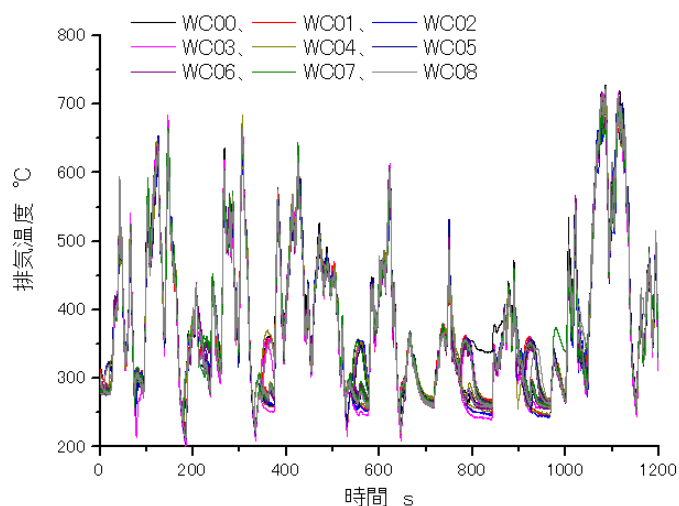


図 2-5-3-15 新開発触媒試験時の温度履歴

図 2-5-3-20 に新開発触媒の 60km/h 定速走行時の浄化性能を示す。どの触媒においても、CO はほぼ 100%、THC は 98%以上、NO_x も 97%以上の高い浄化率となることがわかり、触媒が十分に高温になる定常条件ではどの触媒も十分な性能を有することがわかる。

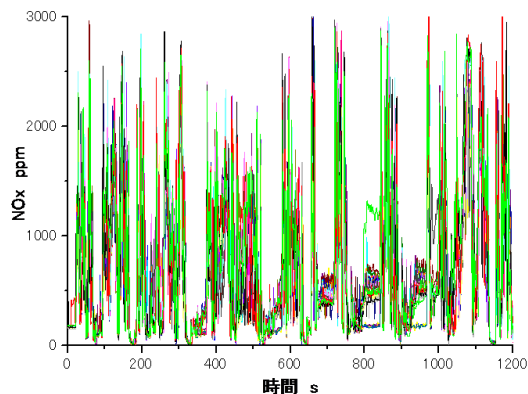


図 2-5-3-16 新開発触媒試験時の NO_x 履歴

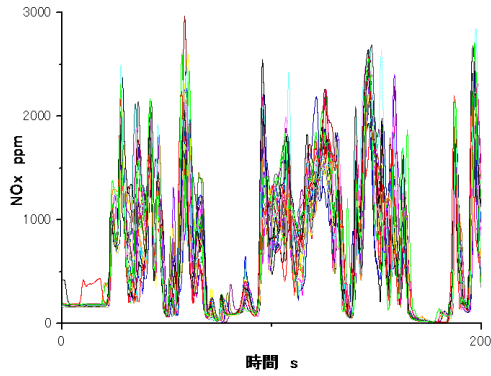


図 2-5-3-17 新開発触媒試験時の NOx 履歴

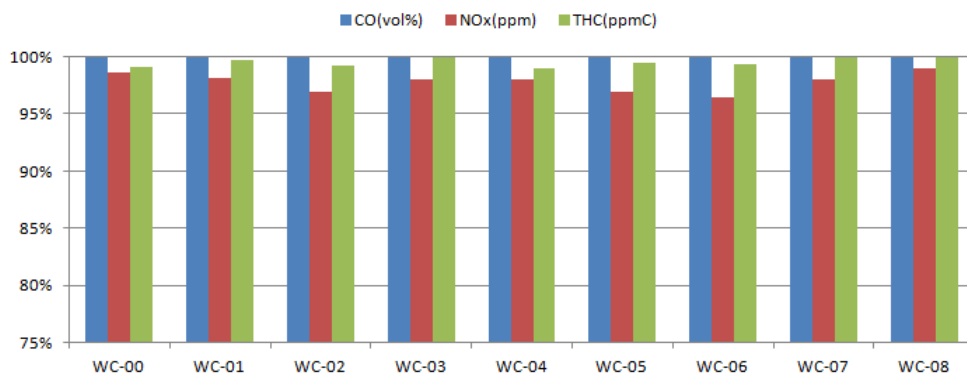


図 2-5-3-18 新開発触媒の 60km/h 低速走行時の浄化性能

図 2-5-3-21 から図 2-5-3-23 に、各新開発触媒の JC8 モード走行試験時の NO_x、THC、CO の浄化率を示す。WC08、WC07、WC04 の順に NO_x 浄化性能が高く、ほぼ基準触媒と同等の浄化性能を示している。続いて、WC05 も 90%近い浄化率を示している。他の触媒も 83%以上の性能となっているが、自動車用触媒としては浄化されなかった率が重要であるため、WC00 で残存率が 7%であるのに対して、WC01、WC02、WC03WC06 では 2 倍以上の残存率となり、エンジンの排出ガスの変動への対応が必要となる。THC の浄化率は、どの触媒でも 95%以上となり高い値となったが、全体的には WC00 と比べると多少低めであった。これは、NO_x の還元性能を向上させるため、やや THC の酸化性能が低めとなったためと考えられる。CO の浄化性能については、WC04、WC06、WC07、WC08 が基準触媒以上の浄化性能を示している。(WC07、WC08 の CO の浄化率については、OBS-2200 の不具合が発生したため、別途再試験を実施し WC00、WC07、WC08 の触媒出口側を MEXA-9100DEGR で測定し、これを用いて換算している。)

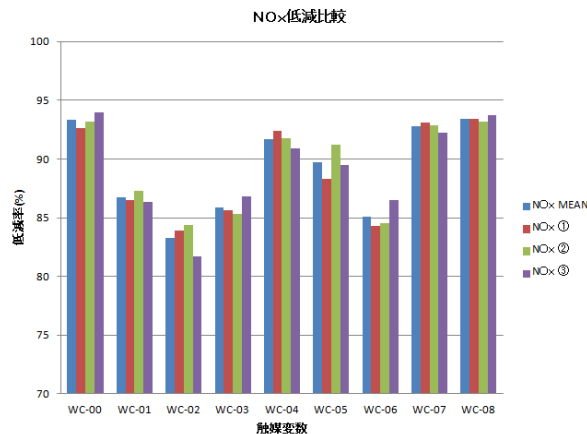


図 2-5-3-19 新開発触媒の JC08 モード走行時の NOx 浄化性能

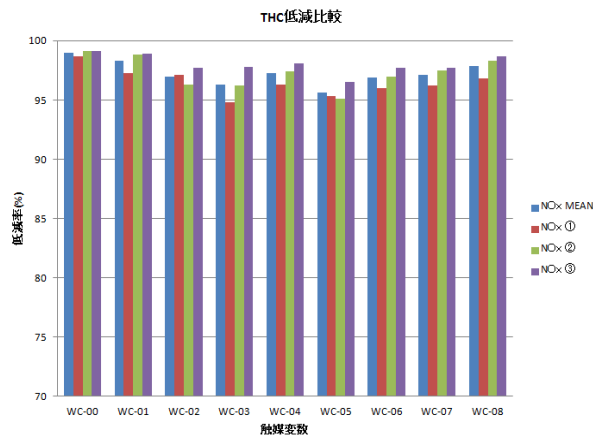


図 2-5-3-20 新開発触媒の JC08 モード走行時の THC 浄化性能

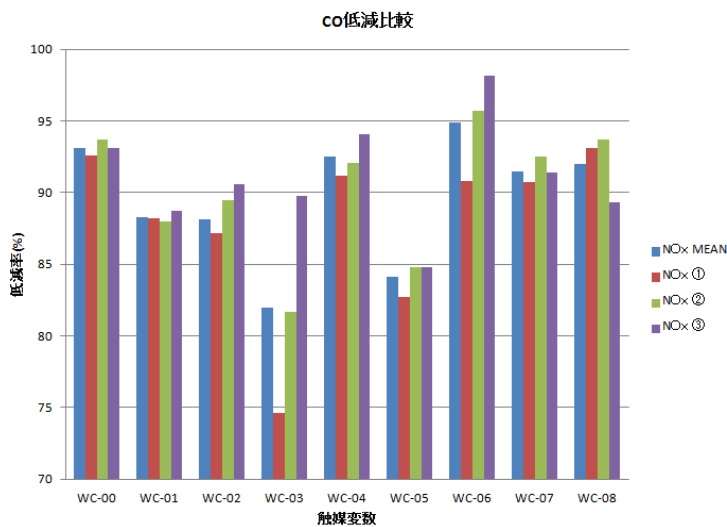


図 2-5-3-21 新開発触媒の JC08 モード走行時の CO 浄化性能

図 2-5-3-24 に劣化触媒、WC00、WC02、WC04、WC07、WC08 の触媒後の NOx 濃度履歴を示す。どのケースも検出されている時間帯がほぼ一致していることがわかる。また、既存の市販品の触媒に対して、NOx 排出幅が広いことがわかる。これは、条件が変わった時の即応性の違いによるものと考えられる。新開発触媒の中では WC07、次いで WC08 が比較的シャープな形になっており、即時性に優れていると考えられる。始動時の触媒温度の低い条件では、基準の WC00 と比較して、WC08 は同程度、またはそれ以上の浄化性能となっている。続いて WC04 の浄化性能が良いことがわかる。これに対して、WC07、WC02 ではこの時間帯での排出が多く、低温での活性が課題であることがわかる。より詳細を議論するため、WC00、WC02、WC04、WC08 の NOx の測定値を積算し、車速、温度、λ と共に図 2-5-3-25、より詳細を見られるように、0 から 550 秒までと、それ以後に分けた図を図 2-5-3-26、2-5-3-27 に示した。0 から 550 秒においては、WC00、WC04、WC08 はほぼ同様の積算値となっていることがわかる。これに対して、前述したが、WC02 は始動後の触媒温度が低いと考えられる 40 秒から 70 秒付近において NOx の排出が他のケースよりも多くなっている。その後、100 秒から 180 秒付近ではどのケースもなだらかに増加しているこの状況では、触媒前の排出ガス温度は高いが、NOx が連続的に発生している領域であり、車速も早く排出ガスの排気速度が速いことも、このなだらかな増加に影響していることも考えられる。比較的低速の走行が続き、排出ガス温度がやや低めとなった後、260 秒付近からの加速で再び増加しているが、その後、減速時の空気の流入やアイドリングによる温度低下と、加速時の NOx 増加を繰り返し、徐々に増加している。WC02 では階段状に増加しているのが読み取れる。他のケースも大小の差はあるが同様の傾向となって

いる。600 秒以後、WC00、WC04、WC08 にわずかながら違いがみられる。600 から WC04 と WC08 は車の減速から加速時の NOx 発生ごとに、WC00 と差を広げていくが、780 秒付近からは、WC08 は WC00 よりも排出が少なく、その差が小さくなっていく。この付近では比較的長いアイドリングと加速減速が繰り返されており、WC08 は WC00 に対して当該温度域での活性が高いことが考えられる。一方、WC04 は 1000 秒付近まで徐々に差が広がっていく、1000 秒以後については、最後の減速後の再加速の領域を除けば、すべての触媒でほぼ同様の上昇率に見える。このように時系列的に解析すると、温度、 λ 、排出ガスの速度などによって各触媒で特徴がありそれぞれの長所をエンジン側の制御と組み合わせることによって、より浄化率を向上することができると考えられる。

図 2-5-3-22
新開発触媒の JC08
モード走行時の触媒
後の NOx 濃度比較

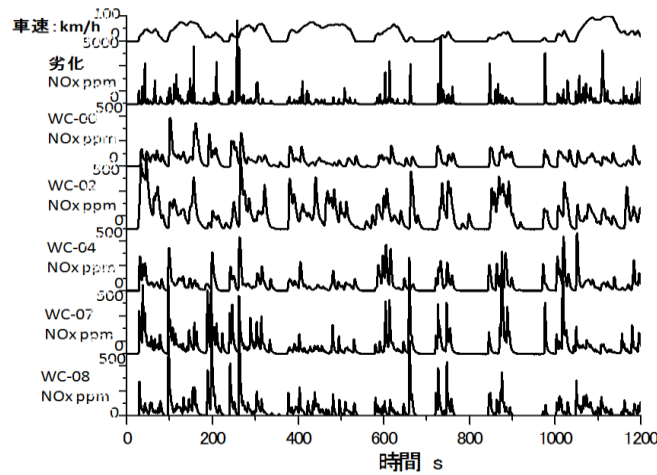
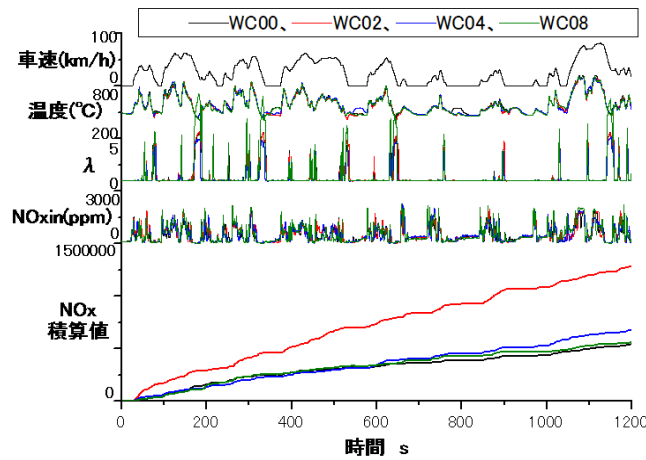


図 2-5-3-23
新開発触媒の JC08
モード走行時の NOx
積算値の比較



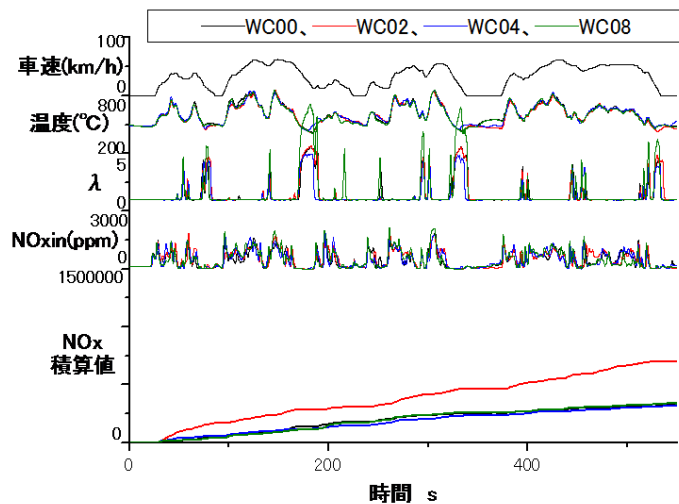


図 2-5-3-24 新開発触媒の JC08 モード走行時の NO_x 積算値の比較

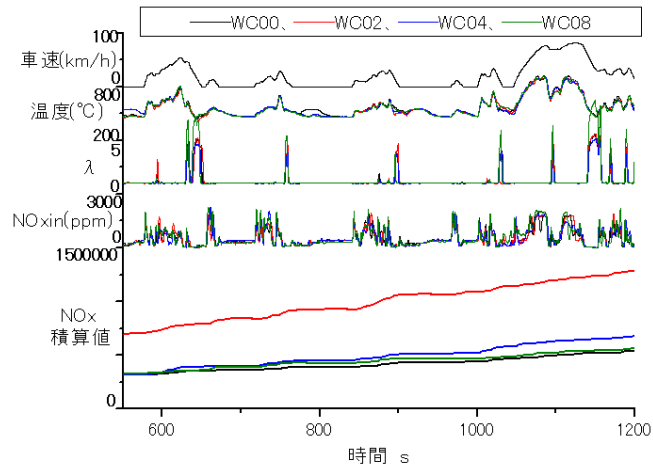


図 2-5-3-25 新開発触媒の JC08 モード走行時の NO_x 積算値の比較

今回の評価では、検出した値を時間軸で積算し、この比によって浄化率とした。実際の排出量は、これに排出ガス量がかかったものになるが、その影響を検討する意味で、WC04 と WC02 の 2 ケースについて、吸入空気量を考慮した場合と、今回の場合を比較した。この結果を図 2-5-3-26 に示す。この結果、CO での結果に違いがあるものの、NO_x と THC については大きな差はなく、この結果からは今回の評価方法が妥当であることが示された。これは、NO_x も THC も触媒を抜けて排出される領域が決まっており、この領域での吸入空気量の状況も違いがあまりないことから、影響が小さかったものと考えられる。

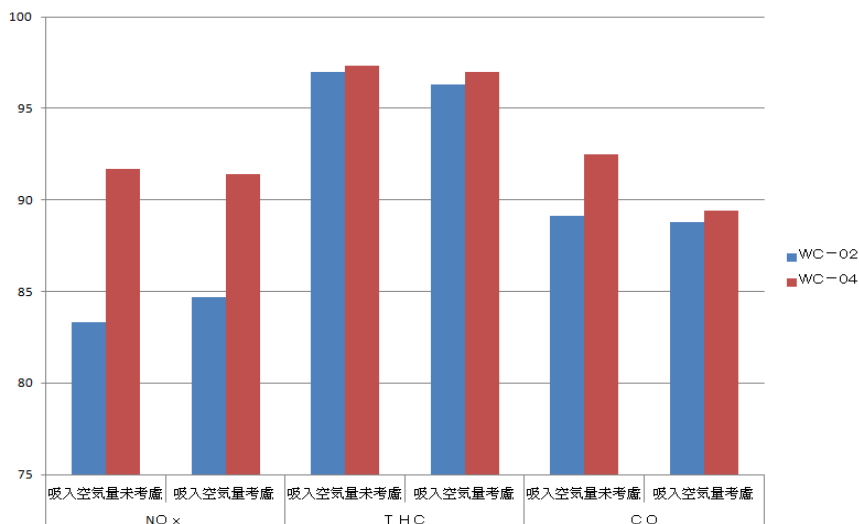


図 2-5-3-26 吸入空気量を考慮した場合との触媒効率の比較

最後に、今回の計測の検証のため、触媒の前後の計測装置を交換して測定し、両者の浄化率の違いを確かめた。この結果を図 2-5-3-27 に示す。図からわかるように、通常、HORIBA : MEXA-9100DEGR で触媒の上流を、HORIBA : OBS-2200 で触媒の後流を計測している（図左）。同様の条件で、HORIBA : OBS-2200 で触媒の上流を、HORIBA : MEXA-9100DEGR で触媒の後流を計測し（図右）、比べたところ、誤差は NOx : 1.4%、THC : 0.7%、CO : 1.2% であり、今回の計測の妥当性が示された。

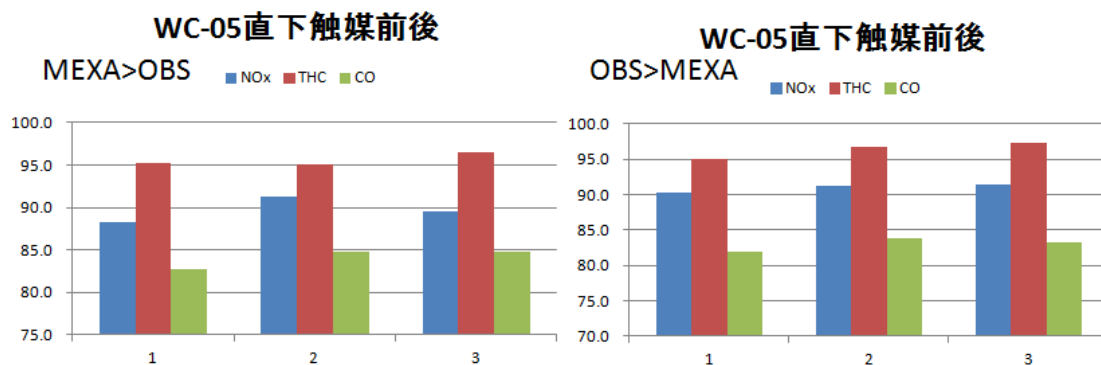


図 2-5-3-27 触媒前後の分析計を入れ替えた場合の触媒効率の比較

(Nox : 1.4%、THC : 0.7%、CO : 1.2%)

4 結言

- (1) JC08 モードにより既存触媒の浄化率を時系列的に計測し、触媒の特性を把握した。
- (2) 本プロジェクトで新開発し、セリウムを 30%低減した触媒の JC08 モード試験を実施し、WC04、WC07、WC08 が基準となる触媒同等の浄化性能を示すことを確認した。
- (3) 新開発触媒の時系列的な性能評価により、今回開発された触媒の性能、今後の課題について示した。

研究開発項目②-6： 開発材料の量産化検討

(第一稀元素化学工業)

1 緒言

新規材料の実用化には材料の性能だけでなく、量産性やコストを強く意識した実現性が重要となる。第一稀元素化学工業はこれまでの実用材料開発の経験を活かし、提案サンプルの小規模量産試作を実施し、低コストで大規模量産できる技術について検討した。また、本プロジェクトの指針となる基準材料を提供した。

2 実験

i. 新材料の量産技術の検討

a. CZ (産総研-多井チーム)

当社製 Zr ゾルと Ce ゾルを原料として用い、Ce/Zr 混合ゾルを調製した。得られた混合ゾルから均一な混合ゲルを得た。乾燥処理して得られた Ce/Zr を所定の温度で焼成することにより Ce/Zr 複合酸化物を得た。

b. ナノグラフト Ce/MnFe (熊本大学-町田教授)

Mn、Fe の混合溶液に対してアルカリ溶液を添加し、Mn/Fe 水酸化物スラリーを得た。得られたスラリーをろ別し、洗浄することで Mn/Fe 水酸化物を得た。続いて所定の温度で焼成し、Mn/Fe 複合酸化物とした。この粉末に対して当社製 Ce ゾルを含浸後、所定の温度で焼成することで、Ce/MnFe 複合酸化物を得た。

c. Sn 添加 CZ (東北大学-佐藤教授)

Sn、Zr、Ce の混合溶液に対してアルカリ溶液を添加し、Sn/Ce/Zr の水酸化物スラリーを得た。得られたスラリーをろ別し、洗浄することで Sn/Ce/Zr 水酸化物を得た。続いて所定の温度で焼成し、Sn/Ce/Zr 複合酸化物とした。

d. Ce/Mn/Ca (東北大学-小俣教授)

Ce、Mn、Ca の混合溶液に対してアルカリ溶液を添加し、Ce/Mn/Ca の水酸化物スラリーを得た。得られたスラリーをろ別し、洗浄することで Ce/Mn/Ca 水酸化物を得た。続いて所定の温度で焼成し、Ce/Mn/Ca 複合酸化物とした。

上記 a~d の粉末について、ICP、XRF を用いて組成分析を行った。また、粒子径はレーザー回折/散乱法、比表面積は BET 法、結晶構造は XRD を用いて評価した。

ii. 評価用基準材料の作製

a. Ce30%削減目標の評価基準となる CeO₂ を 2 種類作製し各研究機関に提供した。

b. 研究機関から CZ 酸化物の材料が提案されたことから、それら材料の評価基準となる CZ 酸化物を 3 種類作製し、提供した。

上記基準サンプルの物性一覧を表 2-6-1 に示す。

表 2-6-1. 基準サンプル物性一覧

品名	基準CeO ₂ Type-A	基準CeO ₂ Type-B	50CZ Type-A	50CZ Type-B	50CZ Type-C
Ig.loss (%)	3.38	4.75	0.69	0.56	1.12
CeO ₂ (wt%)	100	100	58.55	57.85	58.12
ZrO ₂ +HfO ₂ (wt%)	-	-	41.45	42.15	41.88
粒度D ₅₀ (μm)	4.85	0.48	18.8	132	2.03
比表面積 (m ² /g) (Fresh)	173.2	97.7	70.6	81.8	58.6
比表面積 (m ² /g) (Aged)	51.4 (800°C)	21.7 (800°C)	14.9 (1000°C)	14.7 (1000°C)	30.2 (1000°C)
備考	-	-	DKK製法 (Old)	共沈法	DKK製法 (New)

3 結果と考察

a. CZ (産総研-多井チーム)

物性を評価した結果、産総研で得られたラボスケールの粉末と同等であることが確認できた (表 2-6-2)。今回は乾燥機メーカーの小規模量産機で乾燥を行った。乾燥機自体は市販されており、量産での乾燥は問題ないことが確認できた。但し、乾燥物には多量の無機塩、有機物を含有しており、そのまま焼成すると支障があることが判明し、乾燥以降の処理に課題が残ったが、条件の最適化により高い耐熱性を持つ材料を作れることが期待される。

表 2-6-2. 産総研開発材料量産試作評価結果

	目標値	実績値
Ig.loss (%)	-	3.87
ZrO ₂ +HfO ₂ (wt%)	***	***
CeO ₂ (wt%)	***	***
粒度D ₅₀ (μm)	-	(85)
S.A. (m ² /g)	-	106.1

b. ナノグラフト Ce/MnFe (熊本大学ー町田教授)

物性を評価した結果、熊本大学で得られたラボスケールの粉末と同等であることが確認できた (表 2-6-3)。熊本大学のナノグラフトは MnFe 酸化物粒子の表面に Ce をいかに分散担持できるかがポイントとなる。今回の小規模量産試作では、TEM 観察の結果から本材料の特徴的な Ce 担持状態が再現できていることが確認できた。観察された TEM 像を図 2-6-1 に示す。但し、大量量産の場合の Ce 担持方法の検討が不十分である。MnFe₂O₃ 酸化物は OSC 材料として潜在能力が高く、さらに Ce と組み合わせることで触媒として優れた特性を持つことが判明した。Fe の使用については別の課題もあるが、量産化が実現すれば大きな成果が見込める材料である。

表 2-6-3. 熊本大開発材料量産試作評価結果

	目標値	実績値
Ig.loss (%)	-	0.33
CeO ₂ (wt%)	16.7	16.49
Fe ₂ O ₃ (wt%)	55.5	55.58
Mn ₂ O ₃ (wt%)	27.8	27.93
粒度D ₅₀ (μm)	-	355
S.A. (m ² /g)	-	15.7

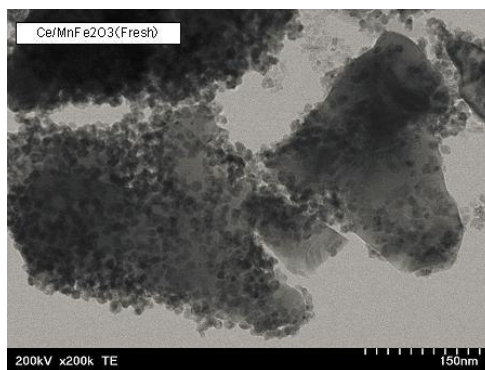


図 2-6-1. 熊本大用材料の TEM 像

c. Sn 添加 CZ (東北大学ー佐藤教授)

物性を評価した結果、東北大学で得られたラボスケールの粉末と同等であることが確認できた (表 2-6-4)。工程上も特に大きな問題はなく、大量生産できる工程を確立できた。

表 2-6-4. 東北大 (佐藤) 開発材料量産試作評価結果

	目標値	実績値
Ig.loss (%)	-	0.35
ZrO ₂ +HfO ₂ (wt%)	32.8	32.95
CeO ₂ (wt%)	57.2	57.15
SnO ₂ (wt%)	10	9.90
粒度D ₅₀ (μm)	-	178
S.A. (m ² /g)	-	13.7

d. Ce/Mn/Ca (東北大学—小俣教授)

物性を評価した結果、東北大学で得られたラボスケールの粉末と同等であることが確認できた (表 2-6-5)。工程上も特に大きな問題はなく、大量生産できる工程を確立できた。

表 2-6-5. 東北大 (小俣) 開発材料量産試作評価結果

	目標値	実績値
Ig.loss (%)	-	4.21
CeO ₂ (wt%)	69.8	70.18
MnO ₂ (wt%)	21.1	21.02
CaO (wt%)	9.1	8.80
粒度D ₅₀ (μm)	-	4.84
S.A. (m ² /g)	-	49.2

4 結言

東北大学の有望シーズ材料 2 種について、採算ベースも考慮し大規模量産が可能であることを確認できたことから、当初目標はクリアできた。産総研、熊本大学の提案材料 2 種についても、大規模量産に対して基本となる工程条件を設定でき、解決すべき課題を明らかにすることができた。

研究開発項目③： 実用触媒の観点に基づく評価指針と実用化の検討

(本田技術研究所)

1 緒言

本開発項目では、プロジェクト活動によって得られた新規の CeO₂ 改良材や非 CeO₂ 材に貴金属を担持して触媒とし、それをセラミックス製ハニカムにコートして量産触媒と同等の状態ですべて (模擬ガス) および実車での性能評価を実施して、プロジェクト目標に達成度の検証および実用上の課題抽出を行った。

その結果、単体評価からは添加材ドーパ CeO₂ 改良材において低温域での NO_x 浄化活性に効果があることを確認した。さらに、非 CeO₂ 材であるペロブスカイト系材料でも同様に低温域での NO_x 浄化活性に効果があることを確認した。一方で、CO および HC (炭化水素) の酸化浄化活性は低下するという課題も浮き彫りになった。

一方で、実車評価の結果からは、WC-04、WC-07 および WC-08 が CeO₂ を 30%減らしているにも拘らず基準触媒に同等以上あるいは近い EM 性能を持つことが確認された (開発項目②-5-3 を参照のこと)。モーダル解析の結果、さらなる低温浄化活性 (エンジン始動直後)、A/F 変動タフネス (フューエルカット時など) および SV タフネス (加速時) の特性改善を図れば基準触媒を超える触媒となる可能性があり、本プロジェクト成果材が 30%CeO₂ 技術の方向性を示す成果となったことを証明できた。

以下に評価条件や結果について、詳細を記す。

2 実験

i. 単体評価

a. 触媒条件

触媒試作は、開発材料を各研究機関あるいは第一稀元素化学工業が大量合成し、それをルネッサンス・エネルギー・リサーチで担持方法等触媒化レシピを検討・設定した上、既存の触媒メーカー等で触媒化、ハニカムコートすることで実施した。

触媒をコートするハニカム仕様は、日本ガイシ製コーゼライトセラミックスハニカムで直径 1 インチ×長さ 60mm (体積：30mL) の大きさで、600 セル/4.3 ミルのものを用いた。

評価する触媒仕様には基準触媒と成果材触媒があり、成果材触媒は基準触媒に対し CeO₂ 量を-30%となる仕様としている。以下に、単体評価触媒の仕様について示す。

表 3-1 単体触媒仕様

触 媒 試 作	ハニカム	Φ1in × 60mm (30mL) / 600セル・4.3ミル
	触媒組成	基準: 1wt%Rh/CeO ₂ +2.5wt%Pd/Al ₂ O ₃ 評価: 1.4wt%Rh/CeO ₂ 改良材+2.5wt%Pd/Al ₂ O ₃ 評価: 1wt%Rh/(非CeO ₂ 材+CeO ₂)+2.5wt%Al ₂ O ₃
	W/C量	基準 : 60g/L+120g/L (1:2) セリア改: 42g/L+120g/L (0.7:2)・・・貴金属量合わせ 非セリア: 60g/L+120g/L (1:2)

b. 単体評価条件

単体評価は、熱 Aging 後で実施している。これはプロジェクト成果材の自動車触媒としての実用性を検証する上で、所定の熱負荷を与えたのちの触媒性能が重要な指標だからである本プロジェクトにおける熱 Aging は、10%の水蒸気を含む大気相当ガス流通下で 1000℃、20 時間実施した。熱 Aging は、本田技術研究所が所有する管状炉で実施した。

単体触媒性能評価は本田技術研究所が所有する単体触媒評価装置で実施し、ストイキエンジン排ガスを模擬したガス条件下でテストした。性能評価対象は NO_x・CO・HC (炭化水素) であり、投入ガス濃度に対する浄化率で評価した。以下に、評価条件を示す。

表 3-2 評価条件

ガス条件	NOx	500ppm
	C ₃ H ₆	400ppm
	H ₂	0.17%
	CO	0.5%
	O ₂	0.49%
	CO ₂	14%
	H ₂ O	10%
流量	25LM (SV: 50,000h ⁻¹)	
温度	RT~450°C 20°C/min.	


基準触媒と成果材触媒（-30%CeO₂仕様）との性能比較により、プロジェクト成果達成度検証および実用上の課題抽出を行った。

ii. 実車評価

実車評価は産総研つくばの古谷 Gr. の実車ラボで実施し、実車は 08M 1.3L 2WD の Fit（中古車：9万 km 走行）を使用した。

評価用触媒は単体の時と同様のルートで試作し、ハニカムは直径 105.7mm×長さ 81.2mm（体積：0.71L）で 600セル/4.3ミルのものを使用した。本田技術研究所にて所定の熱 Aging を施したのち、実車に取り付け可能なコンバータ ASSY 化を内部試作し、産総研つくばに送付し実車評価に供した。以下に、触媒仕様を示す。

表 3-3 実車触媒仕様

触媒試作	ハニカム	Φ105.7mm×81.2mm(0.71L)／600セル・4.3ミル（直下触媒用ハニカム仕様）	
	触媒組成	基準：1wt%Rh/CeO ₂ +2.5wt%Pd/Al ₂ O ₃ 評価：1.4wt%Rh/CeO ₂ 改良材+2.5wt%Pd/Al ₂ O ₃ 評価：1wt%Rh/(非CeO ₂ 材+CeO ₂)+2.5wt%Al ₂ O ₃	
	W/C量	基準：60g/L+120g/L(1:2) セリア改：42g/L+120g/L(0.7:2)・・・貴金属量合わせ 非セリア：60g/L+120g/L(1:2)	
Aging条件		980°C×20h @ 10% steam in Air	

実車 EM 評価は JC-08 モード（Hot）で実施し、NO_x・CO・HC の浄化率を掘場製作所製排ガス分析計によるダイレクト分析で評価した。

3 結果と考察

本項目では、本田技術研究所における単体評価結果から特徴的な特性を示したドーブ材による改良 CeO₂（島根大・小俣研）、ペロブスカイト系材料（東北大・村松研および高村研）の結果について紹介する。また、実車評価による実用課題について、モデル解析を踏まえた結果について述べる。

i. 単体評価結果

a. ドーブ材による改良 CeO₂

研究開発項目②-4-3 で見出されたドーブ材による改良 CeO₂ は高い OSC 能を有し、TWC 特性への効果が期待される。図 3-1 に試作触媒の単体評価結果を示す。

本成果材の特徴は、200~300°C の低温域での高い NO_x 浄化活性にある。これは、H₂ と CO の競争的な NO_x 還元反応が起こったためと推測される。一方で、CO および C₃H₆ の酸

化活性は低い。おそらく基準 CeO₂ は酸化活性が高いが故に H₂ による NO_x 還元がうまく機能しないが、ドーブ材による改良 CeO₂ は酸化活性を抑制した分、H₂ と CO による NO_x の競争的還元活性が向上したものと推測される。

本成果材の課題は、CO・HC の酸化活性と 300℃以上での NO_x 還元活性の低さである。特に HC 活性を向上させることが、全般的な TWC 活性向上につながると思われる。本触媒は単純な混合系の触媒であることを踏まえると、成果材の改良のみならず触媒化の改良（貴金属との組み合わせ、多層化、コートプロセス改良など）による活性向上の可能性は十分にあり、今後の改良に期待が持てる。

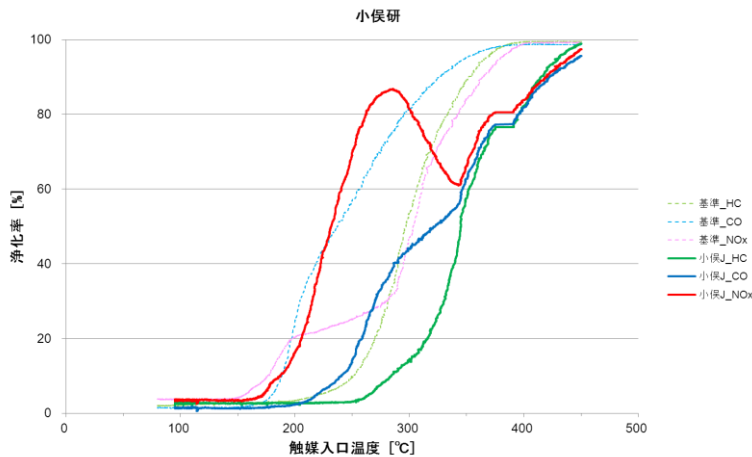


図 3-1 ドーブ材による改良 CeO₂ 触媒の単体評価結果

b. ペロブスカイト材料 A（東北大・村松研）

研究開発項目②-3-3 で見出されたペロブスカイト材料について、単体 TWC 特性評価を行った。Ba には NO_x の吸蔵特性、Zr には貴金属との相互作用（SMOI）について有用な特徴があり、それらを複合化したペロブスカイト材料には TWC 特性への期待がある。図 3-2 に試作触媒の単体評価結果を示す。

本成果材による触媒は 200℃以上で高い NO_x 浄化活性を示し、本プロジェクトにおける単体評価では最も活性の高い触媒であった。一方で、CO および C₃H₆ の酸化活性は基準触媒には及ばないが、比較的早く C₃H₆ 活性が立ち上がるため 300℃以上での NO_x 活性の落ち込みも小さく、全般的に良好な TWC 活性を示している。200℃からの NO_x 活性の高さは前述同様 H₂ と CO の競争的還元反応と思われるが、比較的酸化活性を保っている理由については不明である。さらなる触媒反応解析の深堀が必要である。

ここでは示していないが、現行の量産触媒と比較しても同等レベルの TWC 活性を示しており、本プロジェクトの目標である-30%CeO₂ をクリアしうる成果と言える。

実用化課題としては、さらなる TWC 活性の向上に加えて耐熱以外の劣化因子（被毒など）影響性の確認、工業規模での生産技術の確立等が挙げられる。

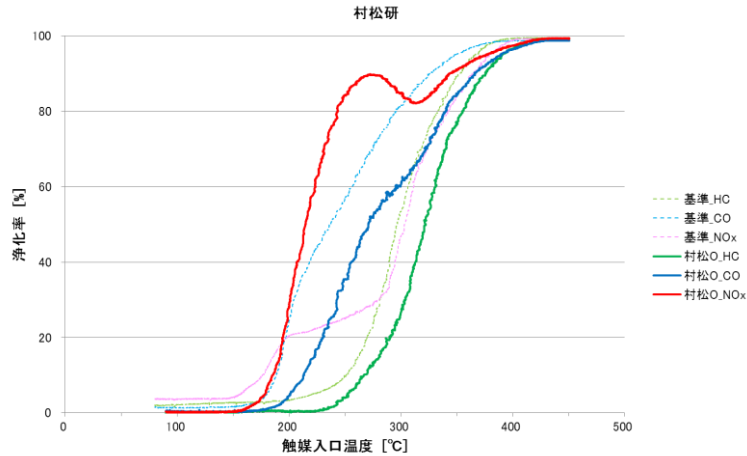


図 3-2 ペロブスカイト A を用いた触媒の単体評価結果

c. ペロブスカイト材料 B (東北大・高村研)

研究開発項目①-2 で見出されたペロブスカイト材料 B は、全く Ce を含有していない非 CeO₂ 系材料であるが、高い OSC 能を有するほか、格子内酸素移動速度が速いという点で非常に興味深い材料である。図 3-3 に試作触媒の単体評価結果を示す。

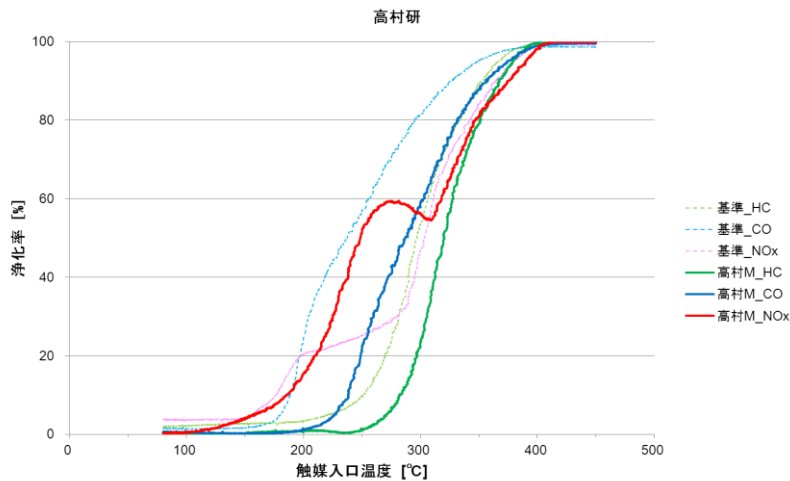


図 3-3 ペロブスカイト B を用いた触媒の単体評価結果

本成果材も 200~300°C の低温域で比較的高い NO_x 浄化活性を示し、H₂ と CO による競争的 NO_x 還元反応活性があることが分かった。また、前述の BaZrCeO₃ 同様、CO および C₃H₆ の酸化活性が大きく低下することがないのも特徴である。ペロブスカイト系材料に共通して得られるこの特徴については、詳細な反応解析と材料特性解析の両面からのアプローチで解明する必要があると思われる。

本成果材の特徴は、固相法による合成であるため低比表面積でありながら比較的高い触媒活性を有していることにある。耐熱性の観点では、このような低比表面積の材料を活用していくアプローチも有効であると言える。

ii. 実車評価からの実用化課題検討

研究開発項目②-5 で示されているが、実車評価の結果から、WC-04、WC-07 および WC-08 が CeO₂ を 30%減らしているにも拘らず基準触媒に近い EM 性能を持つことが確認されている。

以下、実車評価と単体評価の結果を対比しながら、実用課題について述べる。

a. WC-04

WC-04 は、研究開発項目②-5 で示された産総研つくばでの粉末触媒特性評価でも高い

TWC 活性を示した触媒である。図 3-4 に WC-04 の単体評価結果を示す。

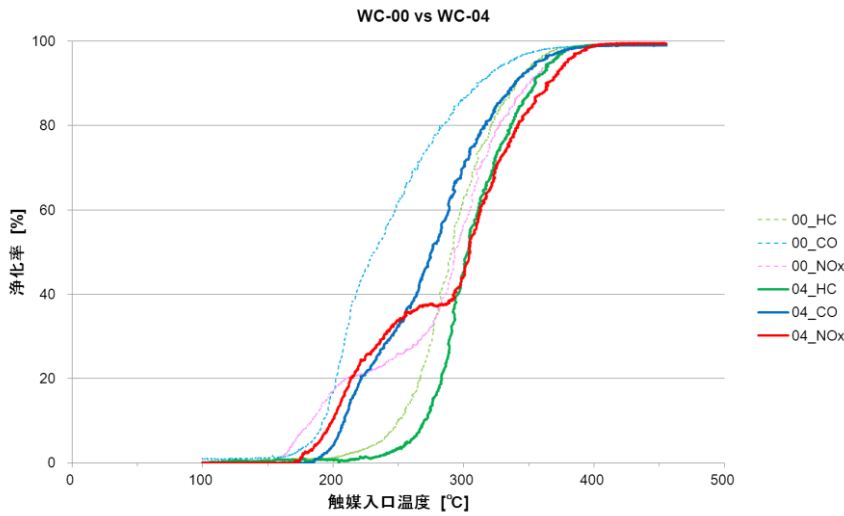


図 3-4 WC-04 の単体評価結果

図 3-1～3 に示すほどの NOx 浄化活性はないが、それでも低温域での NOx 浄化活性は基準触媒より高いことが分かる。本開発材は OSC 能や速度が基準 CeO2 よりも優れていることが実証されており、特に OSC 速度の速さが実車での高い浄化活性に繋がったと推測される。モデル結果からも加速域での NOx 排出が抑制されていることから、OSC 速度が関与していると言える。

一方で、単体評価も実車評価も CO および HC の酸化浄化性能が低く、酸化と還元活性の両立が課題である。

b. WC-07 および WC-08

WC-08 は今回の実車評価で最も EM 性能が良い触媒で、基準触媒同等以上の性能を示した。WC-07 もやや性能は劣るが、基準触媒並みの性能は示している。

以下、図 3-5 に WC-08 の単体評価結果、図 3-6 に WC-07 の単体評価結果、図 3-7 に先行で評価した WC-07 同等材料の単体評価結果を示す。

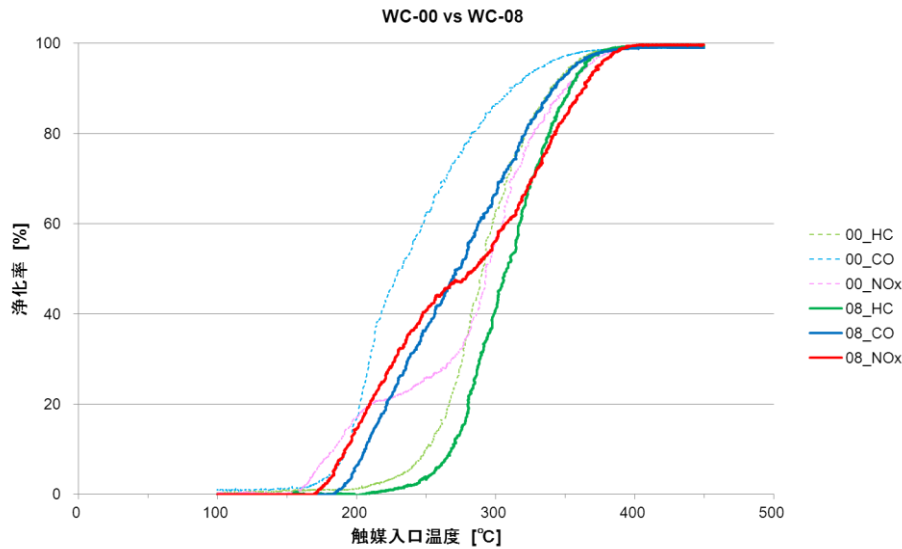


図 3-5 WC-08 の単体評価結果

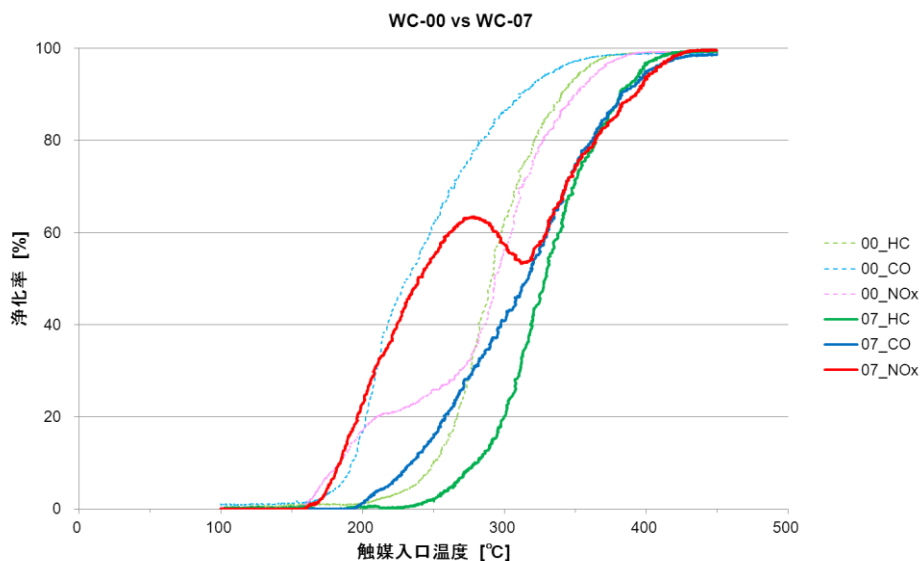


図 3-6 WC-07 の単体評価結果

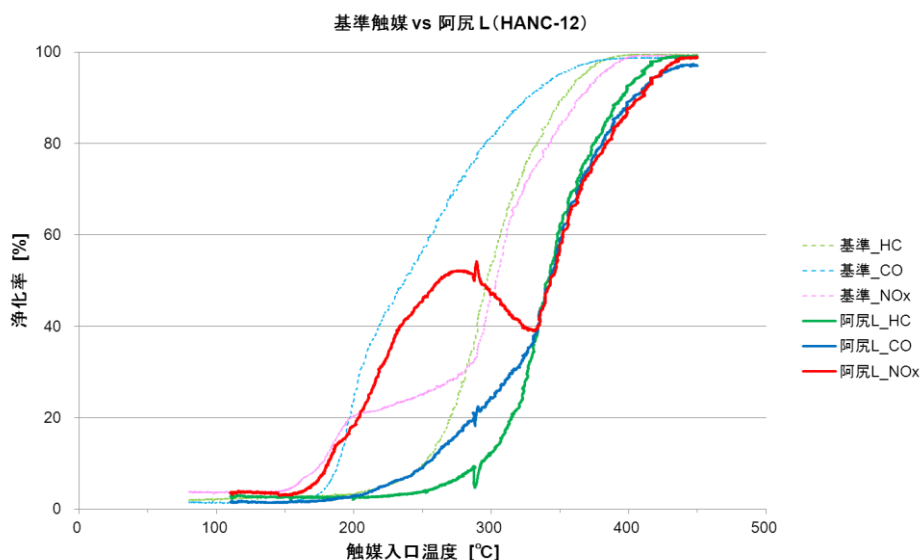


図 3-7 WC-07 同等材料の単体評価結果

図 3-5 を見ると、低温 NOx 浄化活性がやや高く CO および HC の酸化浄化活性が基準触媒に近い特性であることが分かる。この傾向は本触媒のみで見られた特性で、酸化還元バランスに優れた触媒であると言える。その結果、実車評価でも基準触媒同等以上の性能を示し、モーダル解析からも全域で基準触媒同等の EM 特性を示していることが分かる。

一方、WC-07 については低温域での NOx 浄化活性が高く（図 3-6）、これは先行単体評価結果（図 3-7）とも一致した。このことは大量合成でも同等特性を有する触媒合成が可能であることを示しており、量産課題は比較的小さいことを示唆している。単体評価においては CO および HC の酸化浄化活性は低いが、実車評価では CO は基準触媒以上、HC は基準触媒同等の浄化活性を示しており、この点においてはより詳細な解析を要する。

c. WC-06

本開発材は、先行単体評価（図 3-1）では比較的高い活性を示した触媒であるが、実車評価ではその活性が発揮されなかった触媒である。図 3-8 に WC-06 の単体評価結果を示す。

図 3-1 と比べると、低温域の NOx 浄化活性が基準触媒よりは高いものの低めになって

おり、逆に CO および HC の酸化活性はやや高くなっている。この傾向の違いが実車でどのような影響を及ぼしたかはさらに詳細な解析が必要（酸化活性が強すぎて還元活性が活かされていない）であるが、少なくとも大量合成時における成果材の特性安定性には課題があると言える。

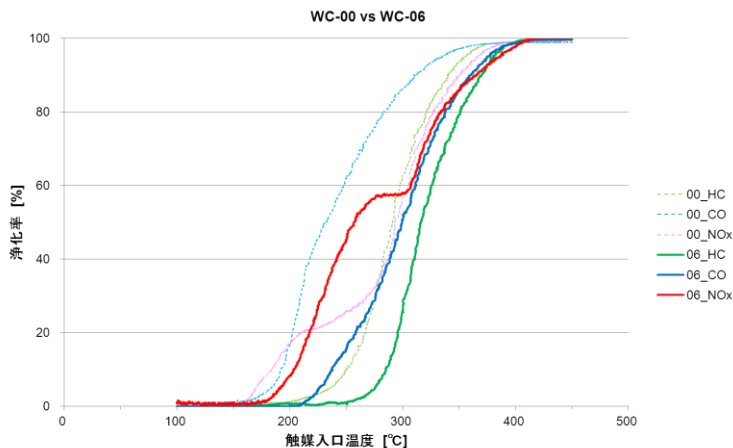


図 3-8 WC-06 の単体評価結果

iii. 実車と単体評価の差異について

上記のように実車での触媒活性は単体評価もしくは TWC 活性試験の活性と必ずしも整合するとは言い難い。CeO₂ を 30%削減する技術の方向性の提案ができた一方で、その方向性を裏付ける科学的指標の提案が今後の触媒開発には必要である。その指標として酸素吸蔵能 (OSC) が挙げられ、開発項目①-4 で OSC の量的解析手法の提案を行った。また開発項目②-2-1 では酸素放出速度 (OSC 速度) を分光学的測定手法により測定する方法を提案した。これらの方法は、触媒全体の平均的 OSC 量および速度を求めるために有効であると考えられる。本項ではさらに、OSC 速度を速度論的解析により指標化する方法を提案し、実機試験と単体試験の結果の解離が顕著であった WC-04 および WC-06 に対して、その理由を考察した。

TWC 反応には OSC が欠かせないが、それは量だけではなく速度も重要な因子であるためと考えられる。しかしながら CeO₂ 上での OSC 速度は極端に速く、しかも表面酸素とバルク（格子内）酸素の移動を分離して計測することは困難である。開発項目②-2-1 で提案された分光学的手法をもってしても表面とバルクの切り分けは容易ではない。そこで、表面とバルクの酸素挙動を見極める手法として H₂-TPR に着眼し、そのピーク挙動から活性化エネルギーを求めて (Ozawa プロット)、活性化エネルギーを OSC 速度の代替として取り扱うことで表面とバルク酸素の挙動と触媒活性の差異の相関について検討を実施した。

具体的には、異なる昇温速度で H₂-TPR 測定を実施し (開発項目②-3-2)、得られたプロファイルのピークシフトを Ozawa プロットにより解析することで、各ピークが示す酸素種の還元のための活性化エネルギーを求めた。Ozawa プロットは、ピーク温度 (T) 昇温速度 (β) から、 $1/T$ に対する $\ln(\beta/T^2)$ のプロットの傾きから活性化エネルギーを求めるものである。

まず、WC-04 と WC-06 で使用した開発材料について、H₂-TPR 測定と Ozawa プロット解析を実施した。図 3-9 に WC-04 材料および WC-06 材料の H₂-TPR プロファイルと各 H₂ 消費ピークの Ozawa プロットを示す。WC-04 材料の酸素還元の活性化エネルギーは WC-06 材料のそれよりも低い値を示した。このことから、WC-04 材料は WC-06 材料よりも酸素の還元速度が速いことが示唆された。

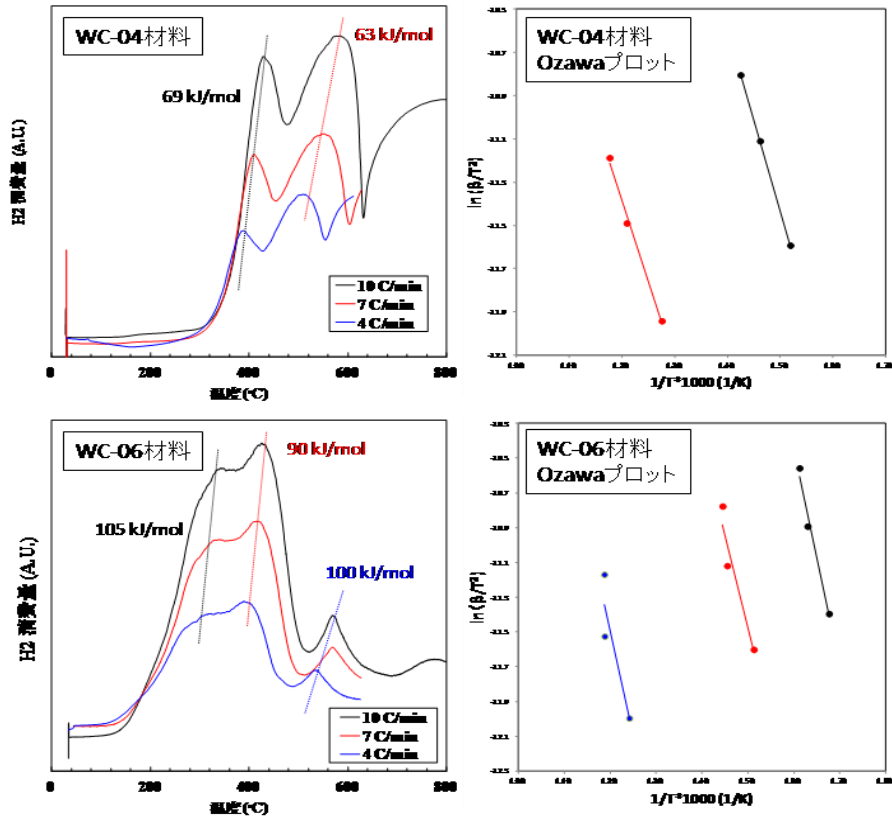


図 3-9 WC-04 および 06 の H₂-TPR と Ozawa プロット

次に、貴金属を担持した状態での H₂-TPR 測定と Ozawa プロット解析を実施した。図 3-10 に、WC-04 および WC-06 の H₂-TPR プロファイルと各 H₂ 消費ピークの Ozawa プロットを示す。両触媒ともに 200℃以下に表面酸素挙動に起因するピークがあり、還元の活性化エネルギーは 30-65 kJ/mol と見積もられ、還元速度の速い酸素種が存在することが分かった。一方で、最も高温に現れる還元ピークは、バルク内酸素の還元には帰属され、図 3-9 における 400-600℃に現れたピークに相当するものと考えられる。これらのバルク内酸素の還元では、WC-04 は WC-04 材料よりも低い活性化エネルギーを示したが、WC-06 は WC-06 材料とほぼ同じ値を示した。このことは、WC-04 材料は貴金属との相互作用が強くバルク内酸素移動を活性化させるが、WC-06 材料はあまり貴金属との相互作用を持たずバルク内酸素移動に寄与しない、という推測を喚起させるものである。つまり、WC-04 は雰囲気酸素濃度変化に対しバルクの酸素移動も対応できるため、高活性な触媒状態を保持しやすいと考えられる。その結果、WC-04 は酸素濃度変動が起きる (A/F 変動) 実車評価で高い活性を示し、一方でガス状態が定常である単体評価ではその効果が見えなかった、と思われる。

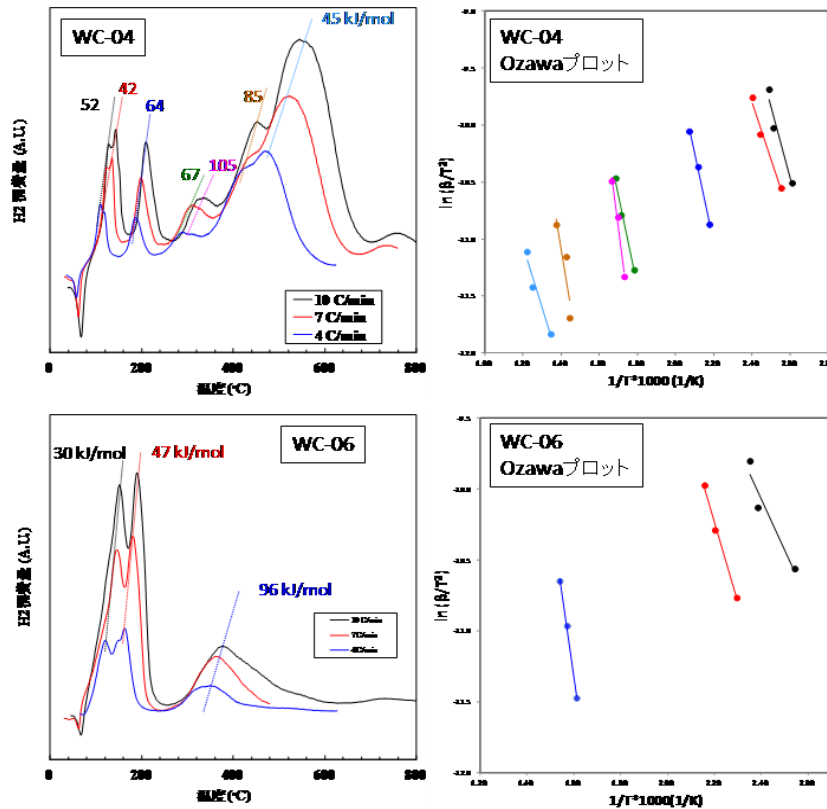


図 3-10 WC-04 および 06 の H₂-TPR と Ozawa プロット

以上の解析結果より、Ozawa プロットによる解析が OSC 速度の特性を示す方法として期待できることが分かり、実用触媒開発においてはバルク酸素移動を活性化できるような材料特性指標を持つ必要があることが示唆された。

4 結言

単体および実車評価結果から、WC-08 が-30%CeO₂ 目標をクリアしうることを確認できた。今後、さらなる触媒としての低温活性や SV タフネスの向上、熱以外の耐久劣化課題を確認・克服することで十分に-30%CeO₂ 触媒を実現することは可能、と言える。

WC-08 以外にも、WC-04 や WC-07 も実車で高い触媒活性を確認できており、今後の改良に期待が持てる。さらに、今回実車評価まで至っていないが、ペロブスカイト材料でも十分に高い NO_x 浄化活性を単体評価で確認しており、実車で触媒活性にも期待が持てる。

短期間の開発ながら実車評価まで実施し、-30%CeO₂ 触媒を実現しうる複数の候補材料を見出すことができ、十分にプロジェクト目標を達成できた、と言える。

特許、論文、外部発表等の件数

特許、論文、外部発表等の件数（内訳）

区分 年度	特許出願			論文		その他外部発表 (プレス発表等)
	国内	外国	PCT*出願	査読付き	その他	
H23FY	0件	0件	0件	8件	0件	35件

IV. 実用化の見通しについて

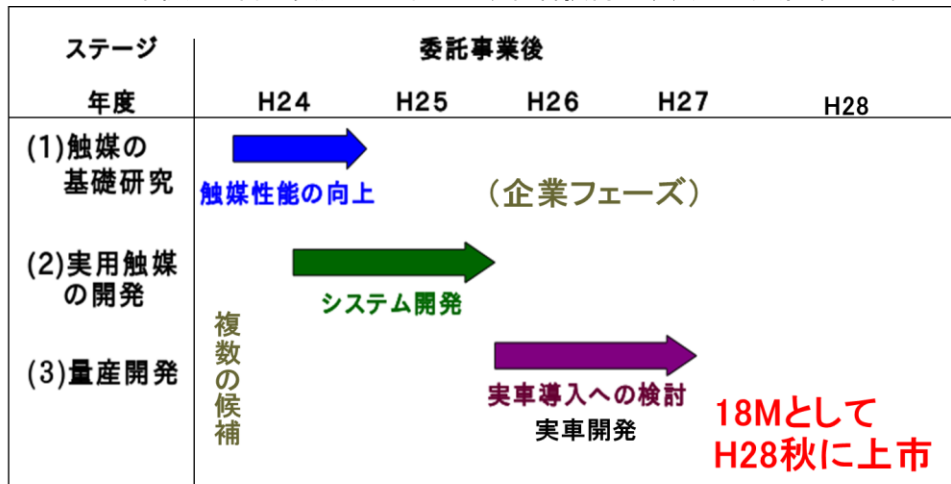
1. 実用化の見通し

1.1 成果の実用化可能性

単体および実車評価結果から、WC-08 が $-30\%CeO_2$ 目標をクリアしうることを確認できた。今後、さらなる触媒としての低温活性や SV タフネスの向上、熱以外の耐久劣化課題を確認・克服することで十分に $-30\%CeO_2$ 触媒を実現することは可能、と言える。

WC-08 以外にも、WC-04 や WC-07 も実車での高い触媒活性を確認できており、今後の改良に期待が持てる。さらに、今回実車評価まで至っていないが、ペロブスカイト材料でも十分に高い NOx 浄化活性を単体評価で確認しており、実車で触媒活性にも期待が持てる。

これらのセリア削減触媒、100%セリア削減非セリア系触媒に関する成果をもとに、今後さらに社内における実用化におけるさらなる性能向上と社内における耐久性基準のクリアを進める。量産生技性やコスト見通しもあるので、18M (2017 年秋) 以降に実用化出来るよう材料技術の改良や量産触媒への組み込みを検討する計画である。



実用化・事業化シナリオ

『アカデミア・研究機関＋セリア供給大手＋自動車メーカー・触媒メーカー』が連携

一 参画各企業の事業化シナリオ

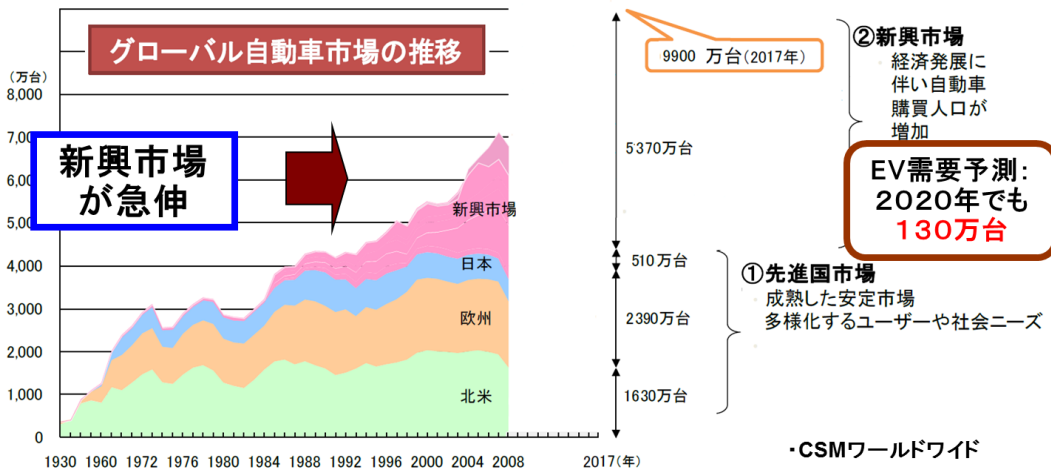
(1) 触媒の基礎研究 ルネッサンス・エナジー・リサーチ (RER)	1. 当PJにおいて改良された耐熱性 γ -アルミナおよび当PJにおいて見出された高性能な改良型セリアについてRERが国内触媒メーカー等と連携して量産化手法の検討を進める。 2. 耐熱性アルミナについては、高温改質触媒への応用も可能な事から自動車用と改質触媒向けのスペックを検討し(可能であれば共通化したい)、来年度中に実車への本格採用に向けた供給能力(数t~10t/年)を目指す。 3. セリアについても製造ロットのサイズを徐々にスケールアップして行き来年度中に実車への本格採用に向けた供給能力(数t~10t/年)を目指す。いずれも、DKKK、ホンダと協議しつつ量産体制を構築する。
(2) 実用触媒の開発 本田技術研究所	1. プロジェクト成果材のいくつか(例: BaZrCeO ₃ など)について、量産TWCへの組み込みとその浄化特性および耐久を把握する。 2. 実用課題を解決する。(詳細開示不可) 3. 実車耐久等を最終確認する。
(3) 量産開発 第一稀元素化学工業	1. 今回、性能向上への可能性が示唆された組成(とくにSn添加CZ、Ce/Mn/Ca)について、当社製法にて改良を重ね、用途が合致すると思われる触媒メーカーの要請に対して提案を行う。 2. 従来から顧客とFeを使った開発を進めてきたが、今回データで示されたFeのOSC性能の特徴、FeとCeのインタラクションを活かした高OSC材料を試作する。量産のめどをつけて触媒メーカーへサンプルワークを行う。(製法、組成、向け先については、当社ノウハウ、顧客との秘密保持契約に基づき開示できない。)

1.2 波及効果

今後の自動車市場では電気自動車(EV)へ移行がすすみ、排ガス処理触媒の重要性が低下するのではないかと懸念もあるようだが、それは先進国の市場において多様化するユーザー・社会ニーズに対応するためのオプションに過ぎない。図に示すようにグローバル自動車市場では経済発展に伴って新興市場における自動車購買人口が急増する見通しで、2017年には内燃機関の需要が5000万台以上に達する。これに対してEVの需要予測ではその後の2020年でも130万台にすぎない。

一方、この巨大な新興市場には資源そのものも保有する新興国のメーカーが一定の技術力を持って参入することは必至でありそこでシェアを確保するためには本プロジェクトによるセリア使用量削減技術は必須であり、成果の波及効果は極めて大きい。

今後も長期間、自動車産業は内燃機関が主流



セリア使用量低減・代替PJの成功

→ 日本企業の国際的な競争力の確保

⑩-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質
大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

Ⅲ. 研究開発成果について

1. 事業全体の成果

現在太陽電池、各種ディスプレイ、タッチパネルなどに必要な透明電極として、酸化インジウム・スズ（ITO）フィルムが主に使用されており、その重要性がますます高まってきている。2006年から2013年でITOフィルムの市場は3倍近くの伸びが予想されている。日本は、世界のインジウム需要の実に86%を占める最大の需要国である。したがって需給バランスの不安定化が生じた際には、産業上極めて大きな影響を受けることは必至である。ITOによる透明電極は、このようなインジウムの資源問題による価格・供給の不安定さという大きな課題を抱えており、その早期解決が迫られている。

炭素ナノ材料であるグラフェンは、単層で97.7%の光透過性とシリコンの10倍以上の高い電子移動度を有し、ITOの代替材料として幅広い工業的応用が期待されている。さらにグラフェンは炭素材料であるため資源枯渇の心配がなく、インジウムの資源問題の解決に資する代替材料として有望である。

グラフェンによるITO代替の実現には、物質・材料の革新的な特性や機能の創出に向けた研究開発を基礎とし、工業生産を目標とする大量合成法の確立と応用の実証が必須である。上述の背景で本研究開発ではグラフェンという新しいナノ炭素材料において、透明電極としての優れた特性を引き出すべくその高品質化、大量合成法及び透明電極利用の技術を開発することにより、ITO代替の実現に資するグラフェン産業の創成に向けて基盤研究を行った。

本研究開発では、わが国の有する先端的な低温プラズマCVD技術、高品質グラファイト合成技術、分散塗布技術、プラント開発技術、透明導電性フィルム技術、高分子利用技術を有機的に結集させた。それによりグラフェンの高品質合成技術、大量生産技術、精密加工技術、フィルム形成技術、および製品開発の要となる融合基盤技術の開発を行った。

ITOによる透明導電性フィルムは電極材料として工業的に幅広く応用されている。その中で市場の90%近くはタッチパネル用途であり、今後ますますタッチパネル用透明電極の重要性が高まると予想される。タッチパネルには、対向する2枚の透明電極の

1枚に電圧を印加し、操作した位置に応じた電圧が2枚目に発生する「抵抗膜方式」と、指先と導電膜との間での静電容量の変化を捉えて位置を検出する「静電容量方式」とがある。静電容量方式の市場規模が近年延びてきているが、2011年の市場規模は60%以上が抵抗膜方式と予想された。そこで本研究開発では市場として最もインパクトの高い、グラフェンによる抵抗膜方式のタッチパネル用透明電極を開発のターゲットとした。

グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の研究開発を通じて、平成24年3月までにグラフェンによる抵抗膜方式のタッチパネル用透明電極を実証することを最終目標とした。

1. 1 研究開発の成果と概要

グラフェンという新しいナノ炭素材料において、透明電極としての優れた特性を引き出すためには、その高品質化、大量合成法及び透明電極利用の技術を開発し、ITO代替の実現に資するグラフェン産業の創成に向けた基盤技術を確立することが必須である。そのため本研究開発では、参画機関がそれぞれ有する先端的な低温プラズマCVD技術、高品質グラファイト合成技術、分散塗布技術、プラント開発技術、透明導電性フィルム技術、高分子利用技術を有機的に結集させた。それによりグラフェンの高品質合成技術、大量生産技術、精密加工技術、フィルム形成技術、および製品開発の要となる融合基盤技術の開発に成功した。

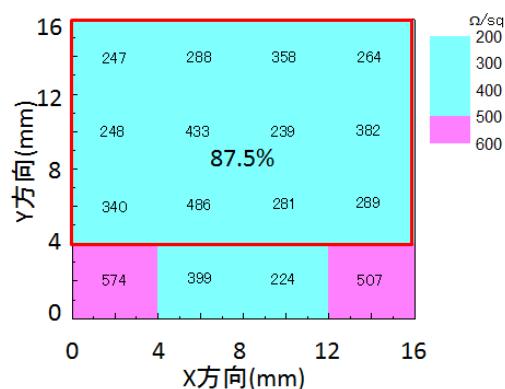
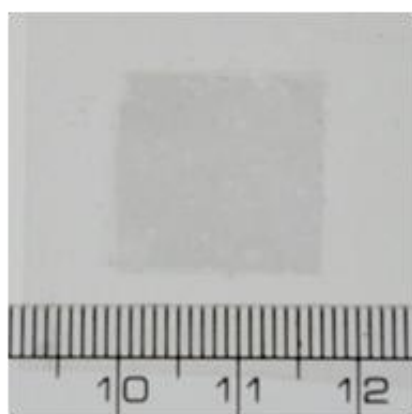
ITOによる透明導電性フィルムは電極材料として工業的に幅広く応用されている。その中で市場の90%近くはタッチパネル用途であり、今後ますますタッチパネル用透明電極の重要性が高まると予想される。そこで本研究開発では平成23年の市場として最もインパクトの高い、グラフェンによる抵抗膜方式のタッチパネル用透明電極の実証を最終目標とし、開発を実施した。以下に、今回の各研究項目における主な研究成果の概要を示す。

研究開発項目「①高品質グラフェン合成技術の開発」

グラフェンの高品質化に適したプラズマ源の探索とそのプラズマCVD（気相成長法）の条件の探索を通してプラズマCVDの最適化を行った。銅の使用量低減によるグラフェン合成の低コスト化を図るために、ポリイミド樹脂フィルム基板に積層した銅の薄膜を基材としたグラフェンの合成技術を開発した。高品質グラファイトフィル

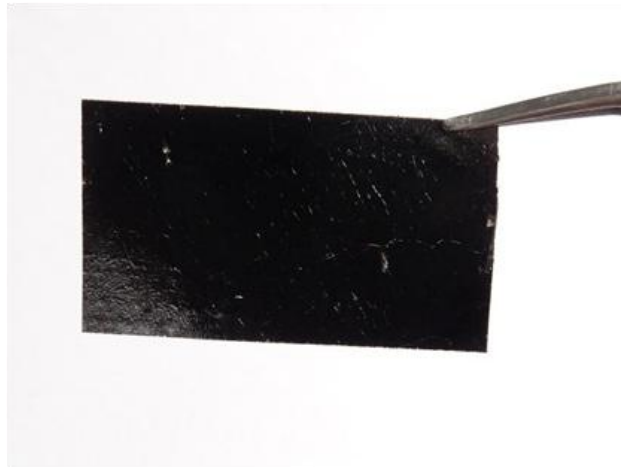
ムや金属基板上の多層グラフェン膜を用いて、層間剥離法やエッチングレス製造方法による高品質グラフェン膜の製造法を開発した。剥離・転写する際に酸化したグラフェンを水素等の還元性気体のプラズマにより低温還元・高純度化する技術を開発した。グラフェンへのドーピング、あるいは、カーボンナノチューブなどとの複合化によるグラフェンの高品質化技術を開発した。気体や固体の炭素源を出発原料としてプラズマや熱処理法を駆使してグラフェンを合成し、それらを改質処理して多層グラフェン膜の高品質化に多面的に取り組み、最終目標を達成した。

最適プラズマCVD技術の確立、プラズマ源探索、銅箔の表面特性の向上、ニッケル箔への成膜、などに取り組み、シート抵抗 $500\ \Omega/\text{s q}$ 以下で透過率87%以上を持つグラフェンの開発に成功した。



シート抵抗 $500\ \Omega/\text{s q}$ 以下で透過率 87%以上を持つグラフェン膜の例

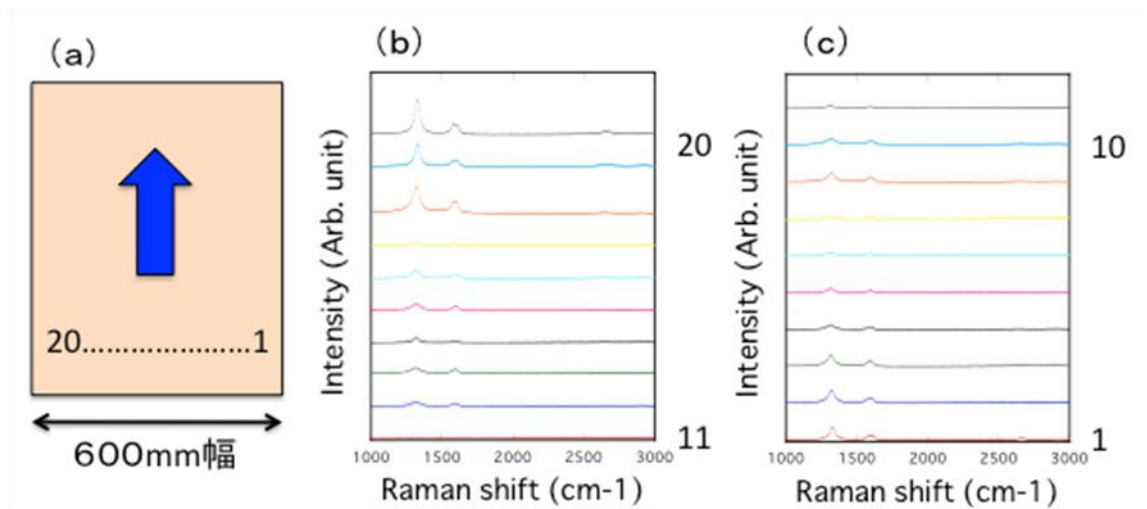
高分子焼成法により作製した厚さ $2.1\ \mu\text{m}$ の高品質大面積グラファイト表面に粘着テープを押し当てて複数回層間剥離する事により、粘着テープ上に厚さ $1\ \mu\text{m}$ 以下の多層グラフェン（約3000層に相当）を作製した。写真はこの方法で作製した厚さ $1\ \mu\text{m}$ （粘着テープで支持）、面積 $30 \times 18\ \text{mm}^2$ の試料（電気伝導度 $25000\ \text{S}/\text{cm}$ ）を示す。



層間剥離法によって作製された高品質グラファイト膜（厚さ $1 \mu\text{m}$ ）の例

研究開発項目「②ロール to ロール大量合成技術の開発」

均質なプラズマ源として大面積化が容易で、低温合成に有利なマイクロ波表面波プラズマCVD法をグラフェンのロール to ロール成膜に適用し、幅 600mm、合成速度 0.6m/分の連続成膜に成功した。



銅箔の搬送方向とスペクトル測定位置の関係 (a) とラマンスペクトル (b) (c)

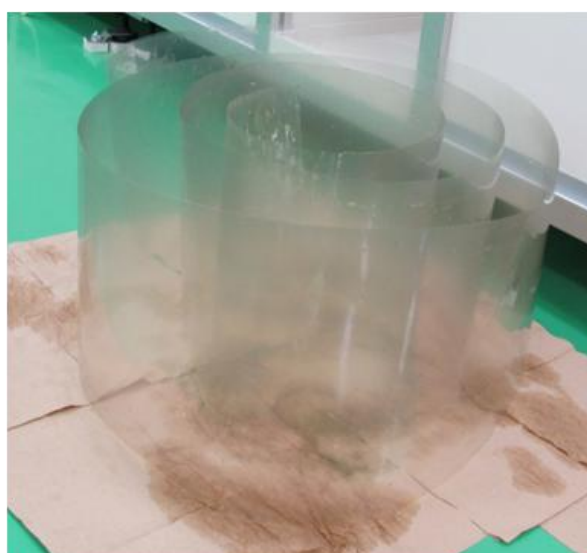
研究開発項目「③透明フィルムの製造技術の開発」

グラフェンのパターン形成技術としてレーザーエッチング法を開発した。また銅箔上

に形成したグラフェンをレーザーにより、透明基板上に剥離・転写する方法の開発と、転写と同時にパターニングも行う技術開発を試みた。ITOで一般的な、低コストのケミカルエッチング法を化学的に安定なグラフェンに適用し、パターニング技術として確立した。また、銅箔に合成したグラフェンのPETフィルムへのロール to ロール転写法を開発した。これらの成果を元に、透明フィルムの製造技術の開発に取り組み、本研究項目の目標を達成した。



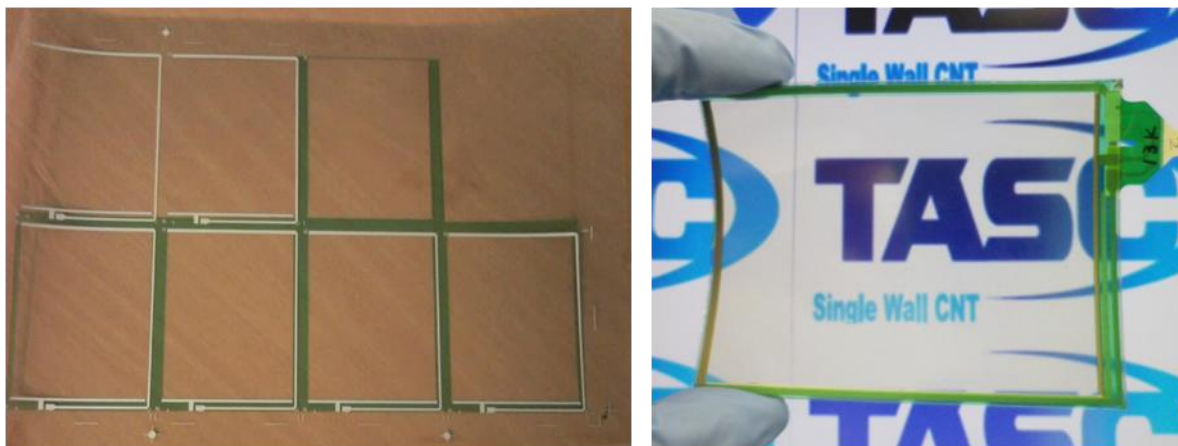
レーザー加工を施したPET上のグラフェン膜の光学顕微鏡写真



長さ5mのグラフェン透明導電フィルム

研究開発項目「④透明導電性フィルムの性能評価」

透明導電性フィルムの適用先としてのタッチパネルに要求される、電氣的、光学的特性、及び耐環境性、耐摺動特性、信頼性の評価を行い、 $b * 値4$ 、ヘイズ3%、シート抵抗リニアリティ $\pm 1.5\%$ を確認。さらにグラフェン透明電極を利用した抵抗膜式タッチパネルの試作を行い、正常な動作を確認した。



銀ペーストおよび絶縁ペーストを印刷加工したグラフェン透明導電フィルム（左）、および、グラフェンタッチパネル（右）

2. 研究開発項目毎の成果

2.1 成果の内容と目標の達成度

以下の表に研究項目毎の目標、成果、および達成度をまとめた。

目 標	研究開発成果	達成度
<p>①高品質グラフェン合成技術の開発</p> <ul style="list-style-type: none">・シート抵抗 500Ω/sq 以下で透過率 87%以上を持つグラフェンを開発する	<ul style="list-style-type: none">・最適プラズマCVD技術の確立、プラズマ源探索、銅箔の表面特性向上、ニッケル箔への成膜、などに取り組み、シート抵抗 500Ω/sq 以下で透過率 87%以上を持つグラフェンを開発。・ポリイミド樹脂基材にコーティングした銅薄膜上にグラフェンを合成する技術を開発。・各種手法を用いてポリイミド薄膜 (7.5~1μm) および超薄膜(1μm 以下)を作製し、熱処理法により高品質グラファイトフィルムを開発。・金属基板上のポリイミド超薄膜を焼成・剥離後、さらに熱処理して多層グラフェン(グラファイト超薄膜)を作製。・機械的剥離法によって、厚さ 1μm 以下、面積 5mm×20mm 以上、室温電気伝導度 25000S/cm の高品質グラファイト薄膜を開発。また、金属を利用したグラファイトからの多層グラフェン剥離・転写法を開発。・水素プラズマによる低耐熱基板上グラフェンの低温還元法を開発。・吸着ドーピングによる低抵抗化により、シート抵抗 500Ω/sq 以下で透過率 87%以上を持つグラフェンを開発。グラフェンの電気伝導性を 2ヶ月間にわたって向上できるドーパントを発見。・グラフェンと導電性ポリマー、CNT との複合化・相乗効果による低抵抗化を実現。	<p>大幅達成</p>

目 標	研究開発成果	達成度
<p>②ロール to ロール大量合成技術の開発</p> <ul style="list-style-type: none"> ・幅 600mm、連続合成速度 0.6m/分のロール to ロール合成技術を開発する ・基板表面前処理・グラフェン合成・後処理機能を有するマイクロ波表面波プラズマCVDロール to ロール成膜装置を開発する 	<ul style="list-style-type: none"> ・幅 600mm、連続合成速度 0.6m/分のロール to ロール合成技術を開発。 ・基板表面前処理・グラフェン合成・後処理機能を有する、マイクロ波表面波プラズマCVDロール to ロール装置を開発。 	<p>達成</p> <p>達成</p>
<p>③透明フィルムの製造技術の開発</p> <ul style="list-style-type: none"> ・線幅 0.3mm のグラフェン膜のパターニング方法を開発する ・PETフィルムへの転写技術を確立し、300mm 幅、長さ 5m の連続転写を実現する 	<ul style="list-style-type: none"> ・最適なパターン形成のためのレーザー加工条件探索により、線幅 0.3mm を実現。 ・極短パルスレーザー等によるグラフェンの剥離・転写を実験的に実施。 ・グラフェン膜の液相処理での除去方法を探索し、線幅 0.3mm を実現。 ・PETフィルムへの転写技術を確立、300mm 幅、長さ 5m の連続転写を実現。 	<p>達成</p> <p>達成</p>
<p>④透明導電性フィルムの性能評価</p> <ul style="list-style-type: none"> ・タッチパネルに要求される電氣的・光学的特性、耐環境性、耐摺動特性、信頼性を評価する ・グラフェン透明電極を利用したタッチパネルを試作する。シート抵抗 500Ω/sq 以下、透過率 87%以上、b * 値 4、ヘイズ 3%、シート抵抗リニアリティ±1.5% 	<ul style="list-style-type: none"> ・タッチパネルに要求される電氣的・光学的特性、耐環境性、耐摺動特性、信頼性を評価した。 ・グラフェン透明電極を利用した抵抗膜式タッチパネルを試作し、正常動作を確認。b * 値 4、ヘイズ 3%、シート抵抗リニアリティ±1.5%を確認。 	<p>達成</p> <p>ほぼ達成</p>

2.2 成果の意義

I T Oによる透明電極は、インジウムの資源問題による課題を抱えている。このような背景で、I T O代替材料の研究開発は次世代デバイスのための基幹材料として各国で非常に活発化している。

炭素ナノ材料であるグラフェンは、単層で97.7%の光透過性とシリコンの10倍以上の高い電子移動度を有し、I T Oの代替材料として幅広い工業的応用が期待されている。さらにグラフェンは炭素材料であるため資源枯渇の心配がなく、インジウムの資源問題の解決に資する代替材料として有望である。さらにI T O透明導電膜は屈曲性に乏しく、次世代のフレキシブルデバイスへの対応が困難であるという大きな課題を抱えている。一方グラフェンは屈曲性については大きな可能性を持ち、I T Oにはない魅力的な性能を有する。

グラフェンによるI T O代替の実現には、大量合成法の確立と応用の実証が必須である。現在世界のグラフェン研究開発は、熱C V D法による合成が中心に進められている。この手法の工業的視点での課題は、合成温度が高く（約1000℃）、かつバッチ方式である部分にある。このため、特にタッチパネル用途のI T O透明導電膜代替材料の製造技術としては、ロールT Oロール（R 2 R）法などの連続生産方式が必須であるが、現状のグラフェンの熱C V Dでは対応が困難である。

本研究開発では、グラフェン透明導電膜の大量生産技術確立のため、世界の炭素系材料研究の追従ではなく、我が国独自の低温プラズマC V D技術というコア技術に基づく研究開発計画と目標を立案した。これにより、グラフェンのR 2 R生産の基礎技術と装置の開発を実施し、それを実証した。

グラフェン透明導電膜作製技術では、合成技術と相まって、C V D合成の基材（通常は銅箔）から透明基材へ合成したグラフェンを転写する工程が必要である。グラフェンは原子層レベルの究極的に薄い膜であるので、高性能グラフェン透明導電膜の作製に対する転写プロセスの重要性は大きい。本研究開発ではグラフェンの転写技術・剥離技術の開発に取り組み、基礎技術を確立した。また工業的にはR 2 R合成したグラフェンをR 2 R方式で透明基板へ転写する技術が必須であり、本研究開発ではこの技術開発にも取り組み、それを実証した。

さらに本研究開発では低温プラズマC V D合成したグラフェン透明導電膜を用いて、タッチパネルデバイスの試作を行い、正常に動作することを確認した。これによりグラ

フェンのITO代替透明導電膜材料としての可能性を実証した。

以上のように、本研究開発はグラフェン透明導電膜の大量生産技術を、世界の炭素系材料研究の追従ではなく、日本独自の低温プラズマCVD法を利用して開発した。本研究開発の成果は今後さらに磨きをかけることにより、ITOに強く依存していた透明導電膜を資源問題のない炭素材料で置き換え、かつ、新たな透明導電膜市場へ導入できることを実証したことに、大きな意義がある。

2.3 知的財産の取得の取り組みおよび成果の普及

本事業において、H24年8月22日までに申請した特許、論文、口頭発表の件数をまとめた。

特許、論文、外部発表等の件数（内訳）

（2012年8月22日現在）

区分 年度	特許出願			論文		その他外部発表 （プレス発表、口頭発表等）
	国内	外国	PCT※出願	査読付き	その他	
H23FY	—	—	—	0件	0件	22件
H24FY	—	—	—	1件	0件	5件

（※Patent Cooperation Treaty：特許協力条約）

本研究では特許公報による公開まで特許件名等を公開しないという方針を採用し、現時点での出願件数等については非公開とする。

IV. 実用化の見通しについて

1. 実用化の見通し

1.1 成果の実用化可能性

従来の実用化を目標とする材料研究開発は、下図のように、基礎研究、応用開発研究、生産技術研究、の3つの段階（ステージ）を順次経て進行することが一般的である。一方本研究開発では、グラフェンという全く新規な材料について、実用化への道のりの、どのステージに大きな課題が潜んでいるかの予想が困難であった。そこでITO代替材料として現状想定できる最も魅力的な応用ターゲットとしてタッチパネル用途の透明導電膜を選定し、そこに至るステージ、すなわち材料研究・基礎研究（グラフェンのプラズマCVD合成技術、および特性評価）、応用開発研究（グラフェン透明導電膜を利用したタッチパネルデバイス）、生産技術研究・量産化技術（R2R合成技術、およびR2R転写・透明導電フィルム作製技術）を同時並行に実施し、実用化に向けた研究開発の期間短縮を図るべく、計画を立案した。



実用化を目標とする従来の材料研究開発（段階的、左）、
および本研究開発の進め方（同時実施、右）

本研究開発では、それぞれのステージにおいて目標を達成し、大きな成果を上げることができた。さらに成果を分析することで実用化への道のりを明確化し、グラフェン透明導電膜の実用化に大きな可能性があることを明らかとした。実用化に向け各ステージにおいて取り組むべき課題は、下記のように整理される。

基礎研究・材料研究

- ・プラズマCVD技術の高度化
- ・剥離・転写技術、ドーピング技術の高度化
- ・導電性のさらなる向上
- ・材料性能の安定性

- ・ 大面積での高品質かつ均一成膜、膜厚・膜特性の制御

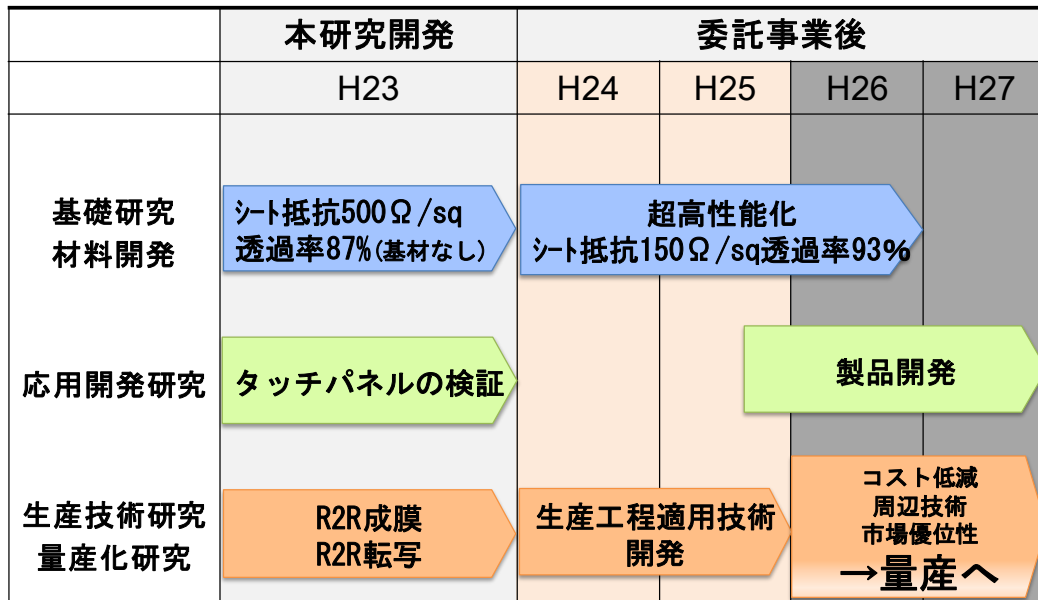
応用開発研究

- ・ 静電容量型タッチパネルへの適応
- ・ タッチパネル高性能化への対応力
- ・ 他素材との複合化による展開力

生産技術研究・量産化研究

- ・ 転写品質の向上
- ・ 生産性、製造コスト
- ・ 周辺技術も含めたトータルコスト、競争力
- ・ 市場での優位性・将来性

上記の課題のうち、グラフェン透明導電膜実用化のための最も大きな課題は、基礎研究・材料研究ステージの導電性のさらなる向上、および生産技術研究・量産化ステージの生産工程適用技術開発である。そこで、下記のような委託事業後の研究開発を経て、ITO代替グラフェン透明導電膜の実用化を目指す。具体的な実用化・製品開発としては当初の計画通り、情報・エレクトロニクス分野が有望で、中でも抵抗膜方式タッチパネルや静電容量方式タッチパネルを見込んでいる。



このように委託事業後の研究開発により今後主流となる高スペックの静電容量型タッチパネルも視野に入れ、さらなる低抵抗化、および生産工程適用技術開発などを経て、実用化を目指す必要もある。尾池工業(株)は抵抗膜式タッチパネル向け透明導電膜の実用化に

引き続き、今後は静電容量方式タッチパネル、及び優れた屈曲性を生かしたタッチセンサ一等がグラフェン実用化の第1候補となると見込んでいる。(株)カネカはさらに高スペックが要求される有機太陽電池、有機LED向けの透明導電膜としての利用を目指すと同時に、本研究で開発した熱処理法による高品質グラファイトフィルムの開発を進めエレクトロニクス分野への適用を図る。また、本研究の成果をもとにグラフェンの生産技術とフィルム加工技術、印刷技術との融合を図り、東レ(株)はフレキシブル透明電極、大日本印刷(株)は静電容量式タッチパネル用グラフェン透明フィルムなど、競争力の高い透明フィルム製品開発を行い、事業化を目指す。(株)アルバックは本研究で得られた知見を元にグラフェン合成装置の高性能化を目指す。

1.2 波及効果

グラフェンは透明性、電気伝導性、熱伝導性、平坦性、屈曲性など数々の優れた特性が知られており、広範な波及効果が期待されている。第一候補であるタッチパネルに焦点を絞り、次の展開として業界分野の動向をみながら着実に応用先を増やしていくことを計画している。

現時点におけるインジウム供給不安は幸いにもそれほど深刻な状況ではないが、世界的政治情勢の急変や有機LED照明への普及に備える必要がある。ユビキタス元素カーボンによる透明導電膜は、材料コストの低減も期待される。その応用先としての最有力候補は静電容量型タッチパネルである。現在、成長が著しく、2013年には300億円を超える見通しであり(富士キメラ総研)、世界に先駆けて実用化することは、我が国の産業競争力強化に大きく貢献する。

更なる低抵抗化と高透過率化を推進することにより、静電容量式タッチパネルの事業化も見据えることが可能となるが、2014年までに材料研究を中心に基礎的研究開発を推進し、2016年までに製品としてのプロトタイプの開発を含む実用化検討を行う。さらに生産工程への適用技術の開発を進め、2018年までに静電容量式タッチパネル用透明導電フィルムの事業化を目指す。

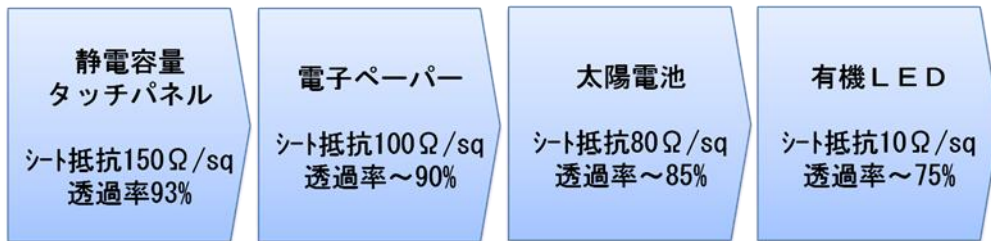
タッチパネルに続くグラフェン透明導電膜の応用として、以下のような展開が考えられる。

グラフェンのITO透明導電膜に対する優位性として、優れた屈曲性が挙げられる。この特長を生かし、既に導電性高分子材料で一部実用化されている車両のフロントパネルのタッチセンサー用途の様に、緩やかな曲面を持つディスプレイ用途が今後有望となる。さらにITOに対するグラフェンの大きな優位性としての、非常に薄いという特長がある。特に有機LEDのような面発光デバイスの電極としては、透明電極で閉じ込め効果(導波モード)による光取り出し効率の低減が課題となっている。これは従来のITO電極が数百nmという厚さを有することに起因する。一方グラフェンを利用する場合は厚さがナノメートル程度と薄いため、導波モードによるロスはほとんど無視できると考えられ、最近

これを検証する報告もなされている。

下図はタッチパネルから有機LEDまで、透明導電膜のスペック（シート抵抗と透過率）に応じた応用可能性を示すものである。最高スペックが要求される有機LEDでは、屈曲性も重要となるため、導波モードによるロスがほとんどないことを加味すると、ITOに対するグラフェンの優位性はたいへん大きい。

本研究開発では、連続大量生産について大きな可能性を有するプラズマCVD技術を用いたグラフェン合成を実証した。この成果に基づいて、今後さらなる高品質化技術を研鑽することにより、グラフェン透明導電膜の応用先はタッチパネル、電子ペーパー、太陽電池、そして最高スペックが要求される有機LEDへと波及し、我が国の産業競争力強化と省エネルギーの促進に貢献すると期待される。



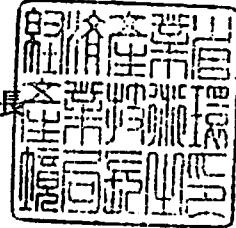
各応用製品に必要な透明導電膜のスペック

経済産業省

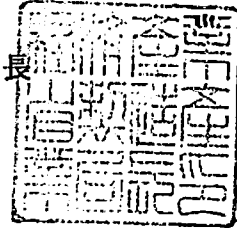
平成 21・03・25 産局第 1 号

平成 2 1 年 4 月 1 日

経済産業省産業技術環境局長



経済産業省製造産業局長



ナノテク・部材イノベーションプログラム基本計画の制定について

上記の件について、イノベーションプログラム実施要領（平成 1 6 ・ 0 7 ・ 2 7 産局第 1 号）第 4 条第 1 項の規定に基づき、別添のとおり制定する。

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、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不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]

．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)

概要

革新的なナノテクノロジーの研究開発を促進し、キーデバイスの早期実現を目指すため、大学や研究機関などの川上と企業などの川下の連携、異業種異分野の連携による提案公募によって、ナノテク実用化に向けたチャレンジを支援する。

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。

研究開発期間

2005年度～2011年度

．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(運営費交付金)

概要

従来の半導体は、性能の向上(高速化、低消費電力化、高集積化)を確保するために微細化が進められてきたが、絶縁性、誘電率等の物理的限界、微細化に伴う製造コストの増大など、集積度向上によるメリットが十分達成されなくなっている。

本研究開発では、シリコンで培った微細化技術やデバイス原理を活用しながら、シリコン材料の物理的限界を突破するための“新材料”および“新(デバイス)構造”の開発を行い、次世代の電子デバイス技術を確立する。

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。

研究開発期間

2007年度～2011年度

(2) 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)

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。

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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(3) 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)

概要

窒化物系化合物半導体は、パワーデバイス、高周波デバイス、発光デバイス等、重要なデバイスの飛躍的な性能向上と消費電力削減への貢献を期待されている。このため、従来の半導体材料では実現出来ない領域で動作可能なハイパワー・超高効率の電子素子、超高速電子素子等の作成に必要な窒化物系化合物半導体先進技術の国際競争力を強化すべく、高品質かつ大口径単結晶基板、高品質かつ大口径エピタキシャル成長技術等の開発を行う。

なお、本事業は、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。

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

研究開発期間

2007年度～2011年度

(4) 三次元光デバイス高効率製造技術(運営費交付金)

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。

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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(5) 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)

概要

近接場光の原理・効果を応用し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。

なお、本事業は、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。

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。

研究開発期間

2006年度～2010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)

概要

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。

なお、本事業は、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。

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。

研究開発期間

2006年度～2009年度

(7) 半導体機能性材料の高度評価基盤開発(運営費交付金)(再掲)

概要

情報通信機器の高機能化や低消費電力化等の要求を満たす半導体集積回路を実現するため、新たな機能性材料開発に貢献する評価基盤技術を開発し、さらに開発した機能性材料を半導体及び半導体集積回路に適用できる統合的なソリューション技術を開発する。

なお、本事業は、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。

技術的目標及び達成時期

2011年度までに、半導体デバイス性能に直結する接合素子の性能性及び信頼性等、半導体製造プロセス全体を俯瞰しつつ、機能性材料開発が可能となる評価基盤技術を開発し、開発した機能性材料を用いた統合的なソリューションが提案できる材料評価基盤を構築する。

研究開発期間

2009年度～2011年度

・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)

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。

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。

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)

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。

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。

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)

)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

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、生活習慣病に起因する血管病変等合併症の早期の診断・治療を図る。

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。

研究開発期間

2005年度～2009年度

)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

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。

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。

研究開発期間

2005年度～2009年度

)新規悪性腫瘍分子プローブの基盤技術開発

「概要

分子イメージングにおいて、病変を可視化する分子プローブの開発を一層強化・促進するため、分子プローブの基盤要素技術と評価システムの開発を行う。

技術目標及び達成時期

2009年度までに、新規の近赤外蛍光分子プローブ及び小動物用近赤外蛍光イメージングシステムを試作し、同システムを用いて分子プローブのがん特異性を定量的に評価するための条件等を明らかにする。

研究開発期間

2008年度～2009年度

・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関連産業・部材産業の競争力を強化する。

() 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)

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 (CFRTP) の開発を行う。

なお、本事業は、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。

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、高速成形技術、接合技術及びリサイクル技術を開発する。

研究開発期間

2008年度～2012年度

(2) 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)

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持つ壁および窓材料を、セラミックスのナノ多孔体構造や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。

なお、本事業は、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。

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 $0.3 \text{ W/m}^2\text{K}$ 以下、壁厚さ 10 mm 程度の超断熱壁材料および熱貫流率が $0.4 \text{ W/m}^2\text{K}$ 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。

研究開発期間

2007年度～2011年度

(3) 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)

概要

高純度、高密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、これを用いた従来よりも格段にパワー (電力) と蓄電量が大きなキャパシタを開発する。

なお、本事業は、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。

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 Wh/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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(4) 革新的省エネセラミクス製造技術開発(運営費交付金)(再掲)

概要

小型炉設備で生産可能な小型セラミック中空ユニットを複数組みあわせることで、これまでその製造が難しかった複雑形状かつ大型セラミクス部材を省エネで製作することができる革新的なセラミック部材製造技術を開発する。

なお、本事業は、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。

技術目標及び達成時期

2013年度までに、高機能化された小さな精密ブロックを立体的に組み上げ、高効率で接合、一体化をし、複雑形状や大型の部材を製造可能とする革新的なプロセス技術の基盤を確立し、高耐性部材、高温断熱部材及び高比剛性部材の試作を行う。

研究開発期間

2009年度～2013年度

(5) 革新的ガラス溶融プロセス技術開発(運営費交付金)(再掲)

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。

なお、本事業は、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。

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。

研究開発期間

2008年度～2012年度

(6) 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)

概要

革新的な高効率送電技術を確立して高温超電導ケーブルの実用化を促進するため、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(DI-BSCCO等)を活用し、首都圏の系統に接続する実証試験及び評価を行う。

なお、本事業は、発電用施設による電気の供給の円滑化を図る観点から行うものである。

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。

研究開発期間

2007年度～2012年度

(7) 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)

概要

超高純度金属材料を発電設備の蒸気配管等に実用化することを目指し、高純度金属材料の高度化に向けた低コスト・量産化製造技術を開発し、実使用環境における超高純度金属材料の耐久性試験等を行う。

なお、本事業は、発電用施設における電気の供給の円滑化を図る観点から行うものである。

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。

研究開発期間

2005年度～2009年度

(8) セラミックリアクター開発(運営費交付金)(再掲)

概要

低温域かつ高効率なエネルギー変換を可能とする次世代型セラミックリアクターの実現のため、世界最高効率の燃料電池マイクロセルの集積構造技術等の開発を行う。

なお、本事業は、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。

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。

研究開発期間

2005年度～2009年度

() 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)

概要

ハイテク製品の製造に不可欠であり世界的な需給逼迫が懸念されるレアメタル(タングステン、インジウム、ディスプロシウム)について、ナノテクノロジー等の最先端技術を活用して、代替材料開発・使用量削減を行う。なお、平成21年度からは、これまでの対象3鉱種に加えて、白金、セリウム、テルビウム等も研究開発の対象とする。

技術目標及び達成時期

タングステン、インジウム、ディスプロシウムについては2011年度までに、白金、セリウム、テルビウム等については2013年度までに、使用原単位について現状と比較して削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（試料提供）できる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であることを少なくとも維持することを前提とする。

〔対象元素〕

- ・超硬工具向けタンゲステン（W）
- ・透明電極向けインジウム（In）
- ・希土類磁石向けディスプロシウム（Dy）
- ・排ガス浄化向け白金族（Pt）
- ・精密研磨向けセリウム（Ce）
- ・蛍光体向けテルビウム、ユーロピウム（Tb、Eu）

研究開発期間

2007年度～2013年度

（ ）環境制約の克服

（1）グリーン・サステナブルケミカルプロセス基盤技術開発

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・有効利用、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GSC（グリーン・サステナブルケミストリー）プロセスを開発する。

技術的目標及び達成時期

2015年度までに、有害な化学物質を削減できる又は使わない革新的な製造プロセス及び化学品の開発、廃棄物、副生成物を削減できる革新的な製造プロセス及び化学品の開発、資源生産性を向上できる革新的な製造プロセス及び化学品の開発を行う。

研究開発期間

2008年度～2015年度

（2）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）

概要

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。

なお、本事業は、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。

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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(3) 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)

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住宅建材分野、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。

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。

研究開発期間

2007年度～2011年度

(4) 高感度環境センサ部材開発*

概要

ダイオキシンをはじめとする極微量有害有機物質を超高感度で安価かつ簡易に計測するために、高感度セラミックセンシング材料を用いた環境センサーを開発する。

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、 $0.001 \text{ ng} \cdot \text{ml}$ 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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(5) 次世代高信頼性ガスセンサ技術開発(運営費交付金)(再掲)

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(COセンサ・メタンセンサ)を開発する。

なお、本事業は、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。

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とメタンのセンサを開発する。

研究開発期間

2008年度～2011年度

・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）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）

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（クリーブ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。

なお、本事業は、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。

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。

研究開発期間

2007年度～2011年度

（2）超ハイブリッド材料技術開発（運営費交付金）

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。

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。

研究開発期間

2007年度～2011年度

(3) 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)

概要

電界紡糸や溶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。

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溶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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(4) 次世代光波制御材料・素子化技術 * (運営費交付金) (再掲)

概要

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。

なお、本事業は、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。

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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(5) 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)

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。

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。

研究開発期間

2007年度～2011年度

(6) 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)

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。

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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

・ 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、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)

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。

技術目標及び達成時期

2010年度までに、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、ナノ粒子のリスク評価及び管理の考え方の提言を行う。

研究開発期間

2006年度～2010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、ライフサイエンス、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、ナノテクノロジー・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。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している。

〔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。

〔標準化〕

- ・経済産業省では、ナノテクノロジー関連の研究開発成果を社会及び市場等に普及するための環境整備として、ナノテクノロジーの標準化活動（ISO/IEC、JIS）を推進している。

〔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。

〔社会受容〕

- ・ナノテクノロジーの産業化の推進とともに、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等の潜在的な課題に関する知見を蓄積する等のナノテクノロジーの社会受容に対する取組みを推進している。
- ・経済産業省では、2006年度から「ナノ粒子の特性評価手法開発」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。
- ・OECDでは、2006年9月、化学品委員会に工業ナノ材料作業部会（WPMN）が設置され、代表的な14種の工業ナノ材料について、試験計画の合意と試験実施を目的とする「スポンサーシッププログラム」が実施されている。スポンサーシッププログラム対象物質のうち、カーボンナノチューブ（単層、多層）、フラーレンの3物質については日本が中心となって担当し、「ナノ粒子の特性評価手法開発」等の成果で貢献している。

〔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。

（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。

- ・ N E D O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組みを実施している（N E D O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。

〔関係機関との連携〕

- ・ 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プロジェクト、希少金属代替材料開発プロジェクトにおいては、文部科学省との合同会議を設置するなど、連携しつつプロジェクトを推進している。

〔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」等が設置され、関係省庁と連携して実施している。

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。
- (15) 平成21年4月1日付け制定。ナノテク・部材イノベーションプログラム基本計画（平成20・03・24産局第1号）は、廃止。

経済産業省

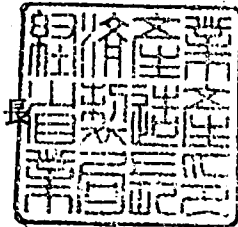
平成21・03・26産局第3号

平成21年4月1日

経済産業省産業技術環境局長



経済産業省製造産業局長



健康安心イノベーションプログラム基本計画の制定について

上記の件について、イノベーションプログラム実施要領（平成16・07・27産局第1号）第4条第1項の規定に基づき、別添のとおり制定する。

健康安心イノベーションプログラム基本計画

1. 目的

今後、世界に類を見ない少子高齢化が進展する我が国において、国民が健康で安心して暮らせる社会を実現することは喫緊の課題である。具体的には、個の医療を通じて健康寿命の延伸、QOL (Quality of Life: 生活の質) の向上を図ることが求められている。

この目的を達成するため、創薬に資する基盤技術の開発、再生医療の確立、医療機器・福祉機器の開発等の手段を適切に組み合わせることによって、健康維持増進、疾患の早期診断、及び適切な治療法の提供を実現するほか、関連産業の競争力強化・ベンチャー企業の創出を図る。

2. 政策的位置付け

革新的医薬品・医療機器創出のための5か年戦略(2009年2月12日改訂)

内閣府、文部科学省、厚生労働省及び経済産業省の間において革新的な医薬品・医療機器の創出に向け、研究資金の集中投入、ベンチャー企業の育成、臨床研究・治験環境の整備、アジアとの連携、薬事法における審査の迅速化・質の向上、イノベーションの適切な評価、官民対話等、研究から上市に至る過程の一貫かつ集中的な支援を実施することとしている。

「ドリームBTジャパン」(2008年12月11日BT戦略推進官民会議)

2002年に策定した「バイオテクノロジー戦略大綱」以降、バイオテクノロジーをめぐる状況が変化してきたことを背景に、新産業の育成・創出、食糧問題解決、バイオマス利活用等の課題に対処すべく、イノベーション強化11項目や官民が協働で取り組むべき最重点課題を策定した。

新経済成長戦略のフォローアップと改訂(2008年9月19日閣議決定)

2006年6月に経済産業省がとりまとめた「新経済成長戦略」を、資源価格の高騰等の構造変化を踏まえフォローアップと改訂を行った。「資源生産性競争」時代における経済産業構造の構築、世界市場獲得と持続的発展のためのグローバル戦略の再構築、地域・中小企業・農林水産業・サービスの未来志向の活性化を3つの柱として、「新経済成長戦略」を強化した。

「iPS細胞研究の推進について(第一次とりまとめ)」(2008年7月3日総合科学技術会議iPS細胞研究WG)

iPS細胞研究の成果がもたらす医療への波及効果や新しいバイオインダストリーの進展等について検討を行い、iPS細胞研究を推進するための研究推進体制、国の支援の在り方、知的財産戦略、国際化協力の在り方等を取りまとめた。

「イノベーション25」(2007年6月閣議決定)

生涯健康な社会形成に向けて中長期的に取り組むべき課題として、治療重点の医療から予防・健康増進を重視する保健医療体系の転換、生命倫理・安全性と医療技術促進政策の調和などをとりあげ、再生医療及び在宅医療・介護に係る社会還元加速プロジェクトを実施するとともに、臨床研究・臨床への橋渡し研究をはじめとする研究開発ロードマップの提示により所要の措置を講じていくこととしている。

がん対策推進基本計画（2007年6月閣議決定）

がん対策基本法に基づき、国、地方公共団体及び関係者等が、がん対策を総合的かつ計画的に推進するために策定された基本方針であり、取り組むべき施策の一つとして「がん研究」が取り上げられている。具体的には、現状、診断薬・診断機器の開発、治療薬・治療機器の開発等が推進されているが、さらに、有用な早期診断技術についての研究開発の推進等に取り組むことが提示されている。

新健康フロンティア戦略（2007年4月新健康フロンティア戦略賢人会議）、同アクションプラン（2007年12月）

健康寿命の延伸や生活の質の向上を図ることを目的として策定された新健康フロンティア戦略及び新健康フロンティア戦略アクションプランの中で、「人間の活動領域の拡張に向けた取組」及び「医療・福祉技術のイノベーション」において、「先進的予防・診断・治療技術の開発」や「医薬等ベンチャー・基盤産業支援対策」等の施策が提示されている。

科学技術の振興及び成果の社会への還元に向けた制度改革について（2006年12月総合科学技術会議）

科学技術の振興や成果還元上障害となる制度的な阻害要因として研究現場等で顕在化している諸問題を解決するための制度改革の実現に向け、制度所管省庁等が取り組むべき工程表とともに意見具申を行っている。

この中で、「治験を含む臨床研究の総合的推進」として、支援体制等の整備増強、臨床研究者・臨床研究支援人材の確保と育成、研究推進や承認審査のための環境整備、国民の参画の4つの観点から改革の方向を示している。

経済成長戦略大綱（2006年7月財政・経済一体改革会議）

がん等の生活習慣病や感染症等各種疾病対策の推進等国民の保健医療水準の向上に資する医薬品・医療機器産業について、関係府省・機関、企業等の双方向の連携の下、特に、基礎・基盤研究、臨床研究及び基礎研究から臨床研究への橋渡し研究を推進するとともに、臨床研究基盤の整備、治験環境の充実等の国民に医薬品・医療機器を迅速に届けるための環境整備を行うことが提示されている。

第3期科学技術基本計画（2006年3月閣議決定）

第2期計画において、優先的に資源を配分することとされたライフサイエンス分野を、引き続き、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）として位置づけ。また、研究分野の重点化にとどまらず、分野内の重点化も進め、選択と集中による戦略性の強化を図り、基本理念の下で新たに設定する6つの政策目標（イノベーター日本 - 革新を続ける強靱な経済・産業を実現、生涯はつらつ生活 - 子供から高齢者まで健康な日本を

実現等)との関係を明確化することとしている。

3. 達成目標

医薬品開発の成功確率の向上に資する技術開発や、基礎研究から臨床への橋渡し研究等を通じた、医薬品の上市期間の短縮や開発コストの低減を図る。

医療機器¹など先進的な技術開発等の推進による国内外生産シェアの増大、厚生労働省との連携事業(マッチングファンド、医療機器開発ガイドラインの策定など)による開発から製品に至るまでの期間の短縮等を達成する。

再生医療の早期実現を目標とした研究体制整備と産業化支援を行う。

高齢者・障害者の自立促進や介護者の負担軽減等のため、優れた技術や創意工夫のある福祉用具の実用化支援を行う。

4. 研究開発内容

・創薬・診断

- 1. 革新的医薬品の創出

(1) 糖鎖機能活用技術開発(運営費交付金)

概要

我が国が強みを持つ糖鎖工学分野において、これまでに取得・開発した「糖鎖遺伝子ライブラリー」「糖鎖構造解析技術」「糖鎖合成技術」を活用し、癌や感染症など様々な疾病に關与する糖鎖の機能を解析する基盤技術を確立し、我が国の優位性を維持するとともに、創薬・診断等の分野における糖鎖機能の産業利用の促進を図る。

技術目標及び達成時期

2010年度までに、糖鎖や糖タンパク質などの機能を分子レベルで効率的に解明するための基盤技術、糖鎖の機能解析・検証技術、及び、有用性が認められた糖鎖機能を産業利用するための基盤技術を開発する。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(2) 機能性RNAプロジェクト(運営費交付金)

概要

近年の研究成果により、タンパク質の合成に關与する既知のRNAとは異なり、がんや発生分化等の重要な生命現象に關与するタンパク質をコードしていないRNA(機能性RNA)の存在が明らかになってきており、世界中の注目を集めている。機能性RNAは再生医療やRNA医薬等への応用化にもつながることが期待されていることから、機能性RNA解析のための新規ツールを開発し、機能解析を行うことにより、本分野における我が国の優位性を確立する。

技術目標及び達成時期

2009年度までに、機能性RNAの候補となるRNAをゲノム配列上から探索

¹ 医療機器は、画像診断システムなどの「診断機器」、生体機能補助・代行機器などの「治療機器」、その他家庭用医療機器、歯科材料、眼科用品を含む。

するバイオインフォマティクス技術の開発や、機能性RNAを解析するための支援機器やツールの開発を行い、機能性RNAの機能解析を行う。

研究開発期間

2005年度～2009年度

(3) ゲノム創薬加速化支援バイオ基盤技術開発(化合物等を活用した生物システム制御基盤技術開発)(運営費交付金)

概要

我が国が強みとする完全長cDNAライブラリーやタンパク質相互作用解析技術等を最大限に活用し、重要なタンパク質ネットワーク解析等により創薬の対象となるタンパク質の効率的な絞り込みを行うとともに、疾患等の生物現象を制御する化合物の探索まで、一貫した技術開発を行う。

技術目標及び達成時期

2010年度までに、超高速・高感度にタンパク質の相互作用を解析する技術や疾患を制御する化合物の探索・評価技術を開発する。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(4) ゲノム創薬加速化支援バイオ基盤技術開発(創薬加速に向けたタンパク質構造解析基盤技術開発)

概要

創薬上重要な膜タンパク質は複合体を形成していることも多く、その構造解析及び相互作用の情報を取得することは創薬研究において重要であるが、その解析は非常に困難である。そこで、膜タンパク質やその複合体の構造情報を取得する新たな技術等の開発に向けて、タンパク質の立体構造及びその構造変化や膜タンパク質複合体の構造情報等の解析及び構造情報を基にした高精度なシミュレーション技術を開発する。

技術目標及び達成時期

2011年度までに生体内に近い状態での膜タンパク質及びその複合体の構造解析手法、リガンド分子との相互作用解析手法を確立するとともに、当該技術から得られた情報に基づくin silicoスクリーニング手法を確立する。

研究開発期間

2007年度～2011年度

(5) ゲノム創薬加速化支援バイオ基盤技術開発(細胞アレイ等による遺伝子機能の解析技術開発)(運営費交付金)

概要

世界的にゲノム創薬が競争激化しているが、創薬のターゲットとなる遺伝子を絞り込みいち早く特許を押さえてしまうことが産業競争力強化のためには重要である。このためには、生体内で非常に複雑に制御されている遺伝子ネットワークシステムを高速・高感度に解析するシステムを開発し、創薬のターゲットの効率的な絞り込みを行うことが必要である。具体的には、多数の細胞に同時に異なる遺伝子を高効

率で導入することにより、複数の遺伝子発現等の時系列計測を行い、得られる種々の細胞応答データから遺伝子ネットワークを解析する細胞アレイ技術を確立し、疾患関連遺伝子等、特定の創薬ターゲットの同定に有用な汎用性の高い解析ツールの開発を行う。

技術目標及び達成時期

2009年度までに、細胞イベント（遺伝子発現、たんぱく質の細胞内局在性等）を測定するための網羅的なレポーターシステム並びに測定装置を新規に開発し、得られるデータから遺伝子ネットワークの解析システムを確立する。

研究開発期間

2005年度～2009年度

(6) 新機能抗体創製技術開発（運営費交付金）

概要

ポストゲノム研究や診断・創薬等において重要となっている機能を有する抗体を創製するため、創薬標的として産業利用上重要だが、解析が困難な膜タンパク質やタンパク質複合体を特異的に認識できる抗体を系統的に作成する技術や抗体の分離・精製を高効率に行うための技術の開発を行う。

技術目標及び達成時期

2010年度までに、産業上有用と考えられるタンパク質やその複合体を特異的に認識する抗体を創製するための基盤技術、及び、製造コスト低減に向けた抗体の分離・精製等を高効率に行う技術を開発する。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(7) 基礎研究から臨床研究への橋渡し促進技術開発（運営費交付金）

概要

がん対策等の国民医療高度化を目指し、急速に発展している多様なバイオ技術の融合と医療現場への円滑な橋渡しによるイノベーションの創出・加速のため、総合科学技術会議のもと文部科学省及び厚生労働省と連携し、橋渡し研究の強化に一体的に取り組む。具体的には、民間企業と臨床研究機関（文部科学省や厚生労働省が整備する橋渡し研究拠点等）が一体となって行う、医薬品、医療機器、診断ツール等の開発を推進する。

技術目標及び達成時期

2011年度までに医療現場及び臨床研究からのフィードバックに基づく研究開発により、医薬品、医療機器、診断ツール等の研究開発成果を円滑に実用化につなげる仕組みを確立する。

研究開発期間

2007年度～2011年度

(8) 幹細胞産業応用促進基盤技術開発（運営費交付金）

) i P S 細胞等幹細胞産業応用促進基盤技術開発

概要

創薬プロセス効率化や再生医療への応用が期待される i P S 細胞等幹細胞について、産業応用に不可欠な基盤技術の開発や、i P S 細胞に関連した産業応用事例創出の促進を行う。

技術目標及び達成時期

2013年度までに、安全で効率的な i P S 細胞の作製技術を開発するとともに、産業応用に繋げるために必要となる i P S 等幹細胞の選別・評価・製造技術を開発し、産業上利用可能な創薬スクリーニングシステムを確立する。

研究開発期間

2009年度～2013年度

）研究用モデル細胞の創製技術開発

概要

医薬品開発における安全性や薬理評価の確実性の向上等、創薬に向けた研究開発を加速するためには、ヒト生体内における様々な反応や遺伝子の機能をより高い精度で解析するツールの開発が重要である。そのため、人体の組織や疾病等の様々なヒトモデル細胞株を創製するための基盤となる技術開発を行う。

技術目標及び達成時期

2009年度までに、創薬等の研究開発に資する研究用細胞の創製技術を確立し、複数種の研究用のヒトモデル細胞を創製する。

研究開発期間

2005年度～2009年度

- 2 . 診断ツールの開発

(1) 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)

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、診断への応用を可能とする全自動解析システムの開発を行う。

技術目標及び達成時期

2010年度までに、BAC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。

研究開発期間

2006年度～2010年度

(2) 糖鎖機能活用技術開発 (運営費交付金) 【再掲】

(3) 基礎研究から臨床研究への橋渡し促進技術開発 (運営費交付金) 【再掲】

- 3 . 創薬・診断に係る基盤整備

(1) 統合データベースプロジェクト

概要

ライフサイエンス分野では、自身の研究成果と既存の研究成果と対比することにより、自身の研究成果の仮説を考案する手がかりが得られたり、新しい実用化の発想が得られたりする可能性があるため、国家プロジェクト等により産生された研究データを一括して活用できるデータベースが、産業界や社会から要望されている。

このため、政府全体の「生命科学データベース統合化の取組」の一環として、経済産業省関連の公的資金研究から産出される研究データを、産業上の有用性を評価のうえ、統合化し、産業界等に提供する。

技術目標及び達成時期

2010年までに経済産業省関連機関により実施されたライフサイエンス分野の研究開発プロジェクトの成果に関する情報提供サイトを構築・運用する。また、ヒト遺伝子に関連した各種研究成果に関しては、平成17～19年度に実施したゲノム情報統合プロジェクトにおいて構築した「ヒト全遺伝子のアノテーション統合データベース (H-Invitational)」を基礎として、経済産業省関連の研究成果を連携して利用できるシステムを構築する。

研究開発期間

2008年度～2010年度

・医療機器、再生医療、福祉機器

- 1 . 医療機器の開発

(1) 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)

) 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

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、生活習慣病に起因する血管病変等合併症の早期の診断・治療を図る。

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。

研究開発期間

2005年度～2009年度

) 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

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。

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。

研究開発期間

2005年度～2009年度

) 新規悪性腫瘍分子プローブの基盤技術開発

「概要

分子イメージングにおいて、病変を可視化する分子プローブの開発を一層強化・促進するため、分子プローブの基盤要素技術と評価システムの開発を行う。

技術目標及び達成時期

2009年度までに、新規の近赤外蛍光分子プローブ及び小動物用近赤外蛍光イメージングシステムを試作し、同システムを用いて分子プローブのがん特異性を定量的に評価するための条件等を明らかにする。

研究開発期間

2008年度～2009年度

(2) 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)

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。

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。

研究開発期間

2006年度～2009年度

(3) インテリジェント手術機器研究開発プロジェクト(運営費交付金)

概要

手術中にごん細胞等の病巣部の位置や動きを正確に診断しながら、必要最小限の切除で確実かつ安全に治療できる診断と治療が一体となった内視鏡手術支援システムの開発を行う。

技術目標及び達成時期

・主要部位対象機器研究開発

脳神経外科領域、胸部外科領域、及び消化器外科領域を対象に、基盤技術を確立し、それらの技術を融合化して、製品化・実用化の目処をつける。非臨床試験を実施し、その有効性と安全性を確認する試験結果を得ることを目標とする。

・研究連携型機器開発

子宮内で行われる出生前治療を行うための新しい手術システム・機器を開発する。非臨床試験を実施し、その有効性と安全性を確認する試験結果を得ることを目標とする。

研究開発期間

2007年度～2011年度（研究連携型機器開発は、2007年度～2009年度）

（4）基礎研究から臨床研究への橋渡し促進技術開発（運営費交付金）【再掲】

- 2 . 再生医療の実用化

（1）再生医療評価研究開発事業（運営費交付金）

）評価技術の開発

概要

ヒトから細胞を採取し、これを体外で培養、必要に応じて組織に分化させ、これを患者に移植・治療する再生医療の国内での早期実用化、産業化を目指し、患者自身の細胞の採取・培養から組織形成・治療までの評価プロセス及び基準を開発、体系化する。

技術目標及び達成時期

2009年度までに、再生医療の早期実用化、産業化のための、細胞培養評価法の開発、組織形成評価法の開発、実用化レベルでの評価基準の確立を行う。

研究開発期間

2005年度～2009年度

）心筋再生治療研究開発プロジェクト

概要

心筋再生治療の早期実用化を目指すために、厚い心筋組織で構築された内部に酸素や栄養を供給できるような血管網を有するバイオ心筋の作成技術を開発する。

技術目標及び達成時期

2009年度までに厚さが5mm以上、酸素、栄養を供給できる血管網を有した心筋組織を開発する。

研究開発期間

2006年度～2009年度

）三次元複合臓器構造体研究開発プロジェクト

概要

生体適合性等を備えた三次元複合臓器構造体を開発し、従来のティッシュエンジニアリング技術では適用できない臓器の再生を可能にするため、大型化、三次元構造化、自己組織化及び計測評価法の確立のための技術基盤の開発を行う。

技術目標及び達成時期

2009年度までに従来のティッシュエンジニアリング技術による単層構造に比べて再生組織の厚さが10倍以上及び構造体積は100倍以上、含有組織は従来の単一組織から3種類以上の複合組織化技術を開発する。

研究開発期間

2006年度～2009年度

（2）基礎研究から臨床研究への橋渡し促進技術開発（運営費交付金）【再掲】

- 3 . 福祉機器の開発

(1) 福祉用具実用化開発推進事業 (運営費交付金)

概要

「福祉用具の研究開発及び普及の促進に関する法律」(福祉用具法)に基づき、高齢者・障害者及び介護者の生活の質の向上を目的として、生活支援分野、社会活動支援分野を中心とした福祉用具の実用化開発を行う民間企業等に対し、研究開発費用の2/3以内を補助することで、多様な福祉ニーズに対応するとともに、当該分野における新産業の創出、成長の促進に資する。

技術目標及び達成時期

高齢者、障害者の生活支援、社会参加支援に資する福祉用具の実用化開発を促進することにより、高齢者等の生活における負担の軽減を図り、安全で安心のできる生活を実現する。より具体的な目標として、各々の補助対象事業終了後3年経過した時点で50パーセント以上を製品化する。

研究開発期間

1993年度～

- 4 . 医療機器、再生医療等に係る基盤整備

(1) 医療機器開発ガイドライン策定事業

概要

医療機器産業への投資、新規企業参入、医療機器研究開発の促進及び薬事法審査の円滑化・迅速化にも資する「医療機器開発ガイドライン」を厚生労働省との連携の下、産学の協力を得て、個別の医療機器ごとに策定し、国内での機器開発促進の環境整備を図るとともに、医療機器産業に製品として、または部品・部材の供給として参入しやすい環境を整備するための方策を検討し、医療機器分野の活性化・国際競争力の強化を図る。

技術目標及び達成時期

2010年度までに、今後実用化が期待される先進的な医療機器(7機種程度)について、工学的安定性や生物学的安定性等に関する詳細な評価基準を策定し、開発ガイドラインとして取りまとめる。また、平成20年度事業において抽出された医療機器分野への新規参入促進および部材・部品供給活性化における課題について、モデル契約の策定やリスクマネジメント手法の開発等、具体的な方策を検討し、医療機器産業の活性化に資するものとする。

研究開発期間

2008年度～2010年度

(2) 福祉機器情報収集・分析・提供事業

概要

福祉用具法に基づき、民間による福祉機器の実用化のための研究開発を促進するため、福祉機器に関する産業技術に係る情報の収集・分析・提供事業を実施することで、当該分野における福祉機器の普及や新規産業の創出・成長の促進を図る。

技術目標及び達成時期

各年において福祉機器に係るニーズ等の調査の実施及び福祉用具実用化推進事業で開発された福祉機器の各種展示会等への出展による情報収集・分析・情報の提供を実施する。

研究開発期間

1993年度～

5．政策目標の実現に向けた環境整備（成果の実用化、導入普及に向けた取組）

[調査研究]

（１）バイオインダストリー安全対策調査（２０００～２００９年度）

バイオテクノロジーの安全性を確保するため、これまで得られている知見を基に、安全性関連データベースの整備、安全性評価手法の高度化に必要な事項の検討及びガイドラインの作成を行う。

（２）バイオ事業化に伴う生命倫理問題等に関する研究（２００２～２０１１年度）

バイオテクノロジーの実用化に際して、新たな技術に対する国民の理解と合意を得るため、新たな技術の産業化に伴って発生する、我が国の社会における様々な問題を、文献の収集、国内外の調査等を行うことにより研究する。さらに、バイオテクノロジーに対する理解を深めるための情報発信等、社会的受容（public acceptance）を高めるための活動を支援する。

[標準化]

・各プロジェクトで得られた成果のうち、標準化すべきものについては、適切な標準化活動（国際規格（ISO/IEC）、日本工業規格（JIS）、その他国際的に認知された標準の提案等）を実施する。具体的には、統合データベースの情報やインターネットに公開されている情報資源等を相互運用するために、必要なデータ形式、フォーマット等の標準化を推進する。

・高齢者等支援機器については、関係省庁との緊密な連携の下、標準化等の手法による実用化及び普及の方策を検討する。

[導入普及促進]

・ゲノム研究の進展は、個人遺伝情報を用い、情報技術を駆使した幅広い医療・健康サービスによる人々の健康や福祉の向上、さらには新しい医療・健康サービス産業の育成に重要な役割を果たそうとしているが、その際、人権を尊重し、社会の理解と協力を得て、個人遺伝情報の厳格な管理の下で適正に事業を実施することが不可欠である。そのため、個人遺伝情報を安全に保護するために作成した事業者が遵守すべきルール「経済産業分野のうち個人遺伝情報を用いた事業分野における個人情報保護ガイドライン（2004年12月17日告示）」（個人遺伝情報保護ガイドラインという）を適切に運用する。

[産業間連携]

・バイオベンチャーは商品を市場に送り出すまでに長期間を要する、研究開発のために多額の資金調達を必要とする、事業を行うために様々な規制・審査を経る必要がある等、他業種のベンチャー企業と比較して困難な問題を抱えていることが多い。そのため、バイオ

ベンチャーの様々な問題に対して施策への反映を検討し、補助金等の施策の紹介を通じてバイオベンチャー振興を図る。

- ・「産業クラスター計画」に基づき、全国のバイオクラスターにおいて、企業間のネットワーク形成の支援、産学連携による研究開発プロジェクトの支援、地域系ベンチャーファンドによる資金調達支援等を実施していく。

- ・医療の進歩・国民の健康に貢献する医療機器・用具の産業技術力向上及び国際競争力強化を目指し、研究開発から市場化までのすべてのプロセスにおけるマクロな戦略の検討と、医療機器の重要性について社会的認知の向上を実現するための仕組み及び個別プロジェクトの形成をはかることを使命とした「医療技術産業戦略コンソーシアム(METIS)」が平成13年に設立され、現在第3期に入っているところである。

[プロジェクト等間の連携について]

- ・ゲノム創薬加速化支援バイオ基盤技術開発(化合物等を活用した生物システム制御基盤技術開発)については、タンパク質機能解析・活用プロジェクトの成果を活用することで、超高速・高感度にタンパク質の相互作用を解析する技術を開発する。

- ・ゲノム創薬加速化支援バイオ基盤技術開発(創薬加速に向けたタンパク質構造解析基盤技術開発)については、「生体高分子立体構造情報解析」の成果を活用することで、膜タンパク質やその複合体の構造情報を取得する新たな技術等の開発に向けて、タンパク質の立体構造及びその構造変化や膜タンパク質複合体の構造情報等の解析及び構造情報を基にした高精度なシミュレーション技術を開発する。

- ・糖鎖機能活用技術開発については、糖鎖合成関連遺伝子ライブラリー構築、糖鎖エンジニアリングプロジェクトの成果を活用することで、糖鎖の機能を効率的に解析するための基盤技術を開発する。

- ・ゲノム創薬加速化支援バイオ基盤技術開発の「化合物等を活用した生物システム制御基盤技術開発」、「創薬加速に向けたタンパク質構造解析基盤技術開発」については、必要に応じ、各々の成果を活用し、効率的、効果的な研究開発を図る。

[関係機関との連携]

- ・総合科学技術会議が推進する基本政策推進専門調査会 分野別推進総合PT ライフサイエンスPT及び科学技術連携施策(「生命科学の基礎・基盤」、「臨床研究・臨床への橋渡し研究」)の下、各プロジェクトについて、関係府省との適切な連携を図る。

- ・「革新的創薬等のための官民対話」の場を通じ、医薬品分野のイノベーションの創出と産業の国際競争力強化に係る諸施策の方向性に対する製薬業界、教育・研究機関、行政(内閣府、文部科学省、厚生労働省、経済産業省)の認識の共有化を図る。

[その他]

- ・一段と激化する特許戦争の中、成果実用化・効率的な研究開発を推進するため、プロジェクト企画段階から、研究テーマ周辺の論文及び特許状況のサーベイ実施やプロジェクト実施段階における特許出願後の事業化構想等、特許に関する戦略的取組(プロパテントアプローチの導入)を実施する。

- ・医療機器の審査体制の強化による薬事法審査の迅速化の観点から、2004年より独立行政法人産業技術総合研究所の工学系研究者を独立行政法人医薬品医療機器総合機構

へ派遣しているところである。

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（事業名に（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。

なお、適切な時期に、実用化・市場化状況等について検証する。

7．改訂履歴

- (1) 平成12年12月28日付けがん・心疾患等対応高度医療機器プログラム制定。
- (2) 平成14年2月26日付け健康維持・増進のためのバイオテクノロジー基盤研究プログラム基本計画制定。
- (3) 平成14年2月28日付け健康寿命延伸のための医療福祉機器高度化プログラム基本計画制定。がん・心疾患等対応高度医療機器プログラム（平成12・12・27工総第13号）は、廃止。
- (4) 平成15年1月27日付け健康維持・増進のためのバイオテクノロジー基盤研究プログラム基本計画制定。健康維持・増進のためのバイオテクノロジー基盤研究プログラム基本計画（平成14・02・25産局第4号）は、廃止。
- (5) 平成15年3月10日付け健康寿命延伸のための医療福祉機器高度化プログラム基本計画制定。健康寿命延伸のための医療福祉機器高度化プログラム基本計画（平成14・02・05産局第2号）は、廃止。
- (6) 平成16年2月3日付け制定。健康維持・増進のためのバイオテクノロジー基盤研究プログラム基本計画（平成15・01・23産局第4号）及び健康寿命延伸のための医療福祉機器高度化プログラム基本計画（平成15・03・07産局第17号）は、本プログラム基本計画に統合することとし、廃止。
- (7) 平成17年3月31日付け制定。健康安心プログラム基本計画（平成16・02・03産局第12号）は、廃止。
- (8) 平成18年3月31日付け制定。健康安心プログラム基本計画（平成17・03・25産局第1号）は、廃止。
- (9) 平成19年4月2日付け制定。健康安心プログラム基本計画（平成18・03・31産局第2号）は、廃止。
- (10) 平成20年4月1日付け制定。健康安心プログラム基本計画（平成19・03・20産局第5号）は、廃止。
- (11) 平成21年4月1日付け制定。健康安心プログラム基本計画（平成20・03・25産局第6号）は廃止。

(ナノテク・部材イノベーションプログラム・環境安心イノベーションプログラム)
「希少金属代替材料開発プロジェクト」基本計画

電子・材料・ナノテクノロジー部
新エネルギー部

1. 研究開発の目的・目標・内容

(1) 研究開発の目的

現在及び将来において我が国経済を牽引していく産業分野において、競争力を発揮し世界を勝ち抜いていくために、多様な連携（川上・川下産業の垂直連携、材料創製・加工との水平連携）による研究開発の推進により、当該市場のニーズに応える機能を実現する上で不可欠な高品質・高性能の部品・部材をタイムリーに提供し、又は提案することができる部材の基盤技術を確立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」、及び環境・資源制約を克服し循環型経済システムを構築することを目的とした「環境安心イノベーションプログラム」の一環として本プロジェクトを実施する。

希少金属は、我が国産業分野を支える高付加価値な部材の原料であり、近年その需要が拡大している。しかし、途上国における著しい需要の拡大や、そもそも他の金属と比較して、金属自体が希少であり、代替性も著しく低く、その偏在性ゆえに特定の産出国への依存度が高いこと等から、我が国の中長期的な安定供給確保に対する懸念が生じている。これに対する具体的な対策として、平成18年6月、資源エネルギー庁から報告された「非鉄金属資源の安定供給確保に向けた戦略」において、①探鉱開発の推進、②リサイクルの推進、③代替材料の開発、④備蓄、等が整理され、現在それぞれにおける具体的な対策が進められている。

本研究開発は、この総合的な対策の一部として非鉄金属資源の代替材料及び使用量低減技術の確立を目的としている。

なお、平成18年3月28日に閣議決定された「第3期科学技術基本計画」では、「ナノテク・材料分野」を「重点推進4分野」の一つとして位置づけ、これに優先的に資源配分することとしている。本研究開発は、同分野に列挙されている「戦略重点科学技術」のうち「資源問題解決の決定打となる希少資源・不足資源代替材料革新技術」にあたるものであり、文部科学省の元素戦略プロジェクトと連携し基礎から実用化までの間隙のない支援体制を確立して行うもので、我が国の科学技術力の向上という観点からも極めて意義が高いものである。

(2) 研究開発の目標

最終目標では、以下希少金属元素の使用原単位（一製品当たり）について現状と比較して以下の低減が見込まれ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。また、製品の機能や製造コストは少なくとも現状と同等を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	最終目標年度
透明電極向けインジウム (In)	現状から50%以上低減	平成23年度末
希土類磁石向けジスプロシウム (Dy)	現状から30%以上低減	
希土類磁石向けネオジム (Nd)	現状から100%低減(代替)	平成24年度
超硬工具向けタングステン (W)	現状から30%以上低減	平成23年度末
排ガス浄化向け白金族 (Pt)	現状から50%以上低減	平成25年度末
精密研磨向けセリウム (Ce)	現状から30%以上低減	
蛍光体向けテルビウム・ユウロピウム (Tb・Eu)	現状から80%以上低減	
排ガス浄化向けセリウム (Ce)	現状から30%以上低減	平成23年度末

さらに、上記開発技術を始めとする希少金属使用低減効果が期待できる技術の実用化を進める。

(3) 研究開発内容

[委託事業]

上記目標を達成するために、以下の研究開発項目について、別紙の研究開発計画に基づき研究開発を実施する。

- ①透明電極向けインジウム使用量低減技術開発
- ②透明電極向けインジウム代替材料開発
- ③希土類磁石向けジスプロシウム使用量低減技術開発
- ④超硬工具向けタングステン使用量低減技術開発
- ⑤超硬工具向けタングステン代替材料開発
- ⑥排ガス浄化向け白金族使用量低減技術開発及び代替材料開発
- ⑦精密研磨向けセリウム使用量低減技術開発及び代替材料開発
- ⑧蛍光体向けテルビウム・ユウロピウム使用量低減技術開発及び代替材料開発
- ⑨Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石及びイットリウム系複合材料の開発
- ⑩排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発、透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発

本研究開発項目は、実用化まで長期間を要するハイリスクな「基盤的技術」に対して、産学官の複数事業者が互いのノウハウ等を持ちより協調して実施する事業であり、委託事業として実施する。

[助成事業（助成率：2／3）]

1) 概要

希少金属の使用量低減を加速するため、産業界で取り組まれている希少金属代替・削減技術の実用化開発で、事業終了後数年に実用化することが期待される優れた提案に対し、助成金を交付する。

2) 対象事業者

日本に登記されていて、日本国内に本申請に係る主たる技術開発のための拠点を有し、助成事業終了後、実用化を主体的に実施する事業者。

3) 研究開発テーマの実施期間

2年を限度とする。（必要に応じて延長する場合がある。）

4) 研究開発テーマの助成率

2／3以内

2. 研究開発の実施方式

(1) 研究開発の実施体制

[委託事業]

研究開発項目①～⑤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」という。）が本事業を運営・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。研究開発項目⑥～⑩はNEDOが単独ないし複数の原則、本邦の企業、大学等の研究機関（原則、国内に研究開発拠点を有していること。ただし、国外企業の特別な研究開発能力、研究施設等の活用あるいは国際標準獲得の観点からの国外企業との連携が必要な場合はこの限りではない。）から公募によって研究開発実施者を選定後、共同研究契約等を締結する研究体を構築し委託して実施する。

また、各研究体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、各研究体には研究開発責任者（テーマリーダー）を置き、その下に研究者を可能な限り結集して効果的な研究開発を実施する。

[助成事業（助成率：2／3）]

本研究開発（希少金属代替・削減技術実用化開発）は、NEDOが、原則本邦の企業、大学等の研究機関（原則、本邦の企業等で日本国内に研究開発拠点を有していること。なお、国外の企業等（大学、研究機関を含む）の特別の研究開発能力、研究施設等の活用または国際標準獲得の観点から国外企業等との連携が必要な部分を、国外企業等との連携により実施することができる。）から、公募によって研究開発実施者を選定し助成（助成率2/3）により実施する。

（2）研究開発の運営管理

[委託事業]

研究開発全体の管理・執行に責任を有する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、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、必要に応じて設置される技術検討委員会等における外部有識者の意見を運営管理に反映させるほか、四半期に一回程度、研究開発責任者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。

また、本研究開発プロジェクトは、文部科学省の元素戦略プロジェクトと研究開発推進にあたり、お互いの研究開発成果・課題等について議論する。さらに、得られた研究開発成果については、合同シンポジウム等により積極的に公開する。

[助成事業（助成率：2/3）]

NEDOは、経済産業省と密接な関係を維持しつつ、本制度の目的及び目標に照らして適切な運営管理を実施する。また、必要に応じて、NEDOに設置される技術検討委員会等における外部有識者の意見を運営管理に反映させる等を行う。具体的には以下の事項について運営管理を実施する。

①研究開発テーマの公募・採択

- a) ホームページ等のメディアの最大限の活用等により公募を実施する。また、公募に際しては、機構のホームページ上に、公募開始の1ヶ月前（緊急的に必要なものであつて事前の周知が不可能なものを除く）には公募に係る事前の周知を行う。
- b) 機構外部からの幅広い分野の優れた専門家・有識者の参画による、客観的な審査基準に基づく公正な選定を行う。特に、本事業では比較的短期間で技術の実用化・市場化を行うことを目的とするものであることに留意し、達成すべき技術目標や実現すべき新製品の「出口イメージ」が明確で、希少金属使用量低減に寄与する案件を選定する。
- c) 公募締切から70日以内での採択決定を目標とし、事務の合理化・迅速化を図る。
- d) 選定結果の公開と不採択案件応募者に対する明確な理由の通知を行う。

②研究開発テーマの評価

NEDO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、厳正な技術評価を適時適切に実施するとともに、その評価結果を踏まえ必要に応じて研究開発テーマの加速・縮小・中止等見直しを迅速に行う。

3. 研究開発の実施期間

[委託事業]

研究開発項目①～⑤については、平成20年度から平成23年度までの4年間とする。平成19年度に経済産業省が実施した「希少金属代替材料開発プロジェクト」事業について、平成20年度よりNEDOの事業として実施するものである。

研究開発項目⑥～⑧については、平成21年度から平成25年度までの5年間とする。

研究開発項目⑨-1及び⑨-2については、平成21年度から平成22年度までの約1年間とする。

研究開発項目⑩については、平成22年度から平成23年度までの約1年間とする。

研究開発項目⑨-3については、平成23年9月から24年9月までの約1年間とする。

[助成事業]

希少金属代替・削減技術実用化開発については、平成24年度から平成27年度までの4年間とする。

4. 評価に関する事項

[委託事業]

NEDO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評価として、研究開発項目①～⑤については、中間評価を平成21年度、事後評価を平成24年度に、研究開発項目⑥～⑧については、中間評価を平成23年度、事後評価を平成26年度に、研究開発項目⑨-1については、事後評価を平成24年度に、⑨-2については、事後評価を平成23年度に、研究開発項目⑩と研究開発項目⑨-3については、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等に応じて前倒しする等、適宜見直すものとする。

[助成事業（助成率：2/3）]

NEDOは、政策的観点から見た制度の意義、目標達成度、将来の産業への波及効果、効果的な制度運営等の観点から、制度評価を制度評価指針に基づき、原則、内部評価により毎年度、実施する（事後評価を含む）。ただし、制度立上げの初年度、翌年度に公募を実施しない年度においては制度評価を実施しないこととする。

また、制度評価結果を踏まえ必要に応じて制度の拡充・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、本制度に係る技術動向、政策動向や本制度の進捗状況等に応じて、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

研究開発成果については、NEDO、実施者ともサンプル提供等普及に努めるものとする。

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、知的基盤整備事業又は標準化等との連携を図るため、必要に応じて、成形体構造評価技術の確立に伴う設計に必要なデータベースの構築、規制動向の把握及び標準案の検討や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2-5-26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。

なお、国内外の研究開発動向を踏まえ、国際的な市場普及を見据えた知財戦略及び知財マネジメントを適切に行うこととする。

(2) 基本計画の変更

NEDO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、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・産業技術総合開発機構法第15条第1項第2号及び第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、また本研究の過程又は成果に基づき開発したプログラム、サンプル若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、事前に研究開発責任者とNEDOに連絡する。その際に、NEDO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。
- (3) 平成21年3月、新鉱種追加により改訂。
- (4) 平成21年12月
 - ・研究開発項目⑥～⑧の委託者決定に伴う詳細目標と事業実施内容の確定による改訂。
 - ・「明日の安心と成長のための緊急経済対策（平成21年度補正予算（第2号）」に係る研究開発項目⑨の追加。
- (5) 平成22年3月、研究開発項目⑦-2 目標の細分化に伴い改訂。
- (6) 平成22年6月、採択条件等反映のため、研究開発項目⑨-1 および⑨-2 の最終目標等を改訂。
- (7) 平成22年12月、「円高・デフレ対応のための緊急総合経済対策（平成22年度補正予算（第1号）」に係る研究開発項目⑩の追加。
- (8) 平成23年7月
 - ・研究開発項目⑨-1 の後続テーマとして研究開発項目⑨-3 を追加
- (9) 平成24年3月、希少金属代替・削減技術実用化開発を追加。
- (10) 平成24年11月、研究開発項目⑨-3 の実施期間の変更、事後評価時期の変更、達成目標の変更、中間評価の削除

研究開発項目①「透明電極向けインジウム使用量低減技術開発」

1. 研究開発の必要性

現行のFPD用ITOターゲットは抵抗値、可視光領域での光透過性、良好なエッチング特性、アルカリ溶液中での安定性の観点から In_2O_3 -90wt%+ SnO_2 -10wt%の組成比が主に利用されている。したがって、ITO製造におけるIn原単位を40%以上低減するために、従来のITO組成の In_2O_3 量を40%以上低減しても従来同等の導電性、エッチング性を維持する新規組成の開発を行う必要がある。 SnO_2 成分が増加すると抵抗率の上昇(高抵抗化)、難エッチング等の課題が予想されるため、抵抗率の上昇を解決する手段として低電圧スパッタ技術の導入、第4元素の添加を実施する。また、難エッチングの課題には H_2O 添加法の導入と第4元素の添加等を実施する。また、その後大型ターゲットの作製と工業化技術の開発を行うためには、第一原理計算による組成の適正化とそれらを基にした小型装置による省In組成のITO膜の実験的立証が必要である。

また、In量の使用原単位を10%以上改善するため、インジウムの使用効率をほぼ100%に高めることができ、さらに真空装置を使わず、エッチング工程が不要でエネルギー削減が可能なITOナノインクを使用した直接基板に描画する方法を開発する。

2. 研究開発の具体的内容

(1)「スパッタリング法における透明電極向けインジウム使用量低減化技術開発」

第4元素を添加することにより、ITO中のIn量を削減する新規組成ITOの開発を行い、かつ別途薄膜化技術を開発し、従来のITO組成で現状の薄膜のトータル厚さを削減する。これらの研究開発によりITO中のIn使用原単位の40%以上の削減を目標とする。

1) 新規ターゲット組成並びにその大型ターゲット焼成技術の開発

(a) 新規ターゲット組成開発

第一原理計算プログラムにより、超大規模シミュレーションをおこない、安定構造、状態密度、電荷密度分布等の解析を行う。得られた結果を用い、新組成ITO薄膜をコンビナトリアル実験手法により作製し、低抵抗、エッチング性、光透過度、高屈折率を向上した新規ターゲットを開発する。

計算機を用いた第一原理計算による手法とコンビナトリアル手法を用いた実験的検証の組み合わせにより、効率的に新規組成の省In組成のITO薄膜の開発を行う。基本的に第4元素は、できるだけ資源的に問題がないものを実施することとする。

(b) 新規ターゲット組成のスパッタプロセスでの支援技術開発

当初、新組成が確定するまでは、 SnO_2 含有量を増やしたITOターゲット(SnO_2 含有量がMax. 50wt%)を作製し、基板上への成膜と薄膜評価を進める。第4元素を添加した新規組成を受け、本プロセスで薄膜測定を行い、プロセスの効果を明らかにする。

(c) 新規ターゲットの開発(新規組成ターゲットの工業化技術開発)

ターゲットの大型化の問題点として、割れ、反り、低密度化がある。これらを解決するために、新規組成ターゲットの工業化技術開発を行う。

2) 透明電極膜の薄膜化スパッタ技術開発

1)の第4添加元素含有新組成の検討をするのと並行して、薄膜化(現状のITO膜構成よりも薄い膜厚)スパッタ技術によるInの省資源化を目指す。

(2)「非スパッタリング法による透明電極向けインジウム使用量低減技術開発」

ITOナノインク塗布法の導入により、装置内壁付着とエッチングでロスしている分をなくし、従来ターゲットとして大量に循環していたInの削減を目指す。これらにより、製造工程で使用しているIn使用原単位の10%を削減する。

1) インクジェット法塗布用ナノインク開発

現在広く実施されている液相法により得られるITO粒子は一次粒子径10~50nmの凝集粒子で、

その粉末抵抗値は $\sim 0.1\Omega\text{cm}$ である。インクジェット法にて薄膜（膜厚 $< 200\text{nm}$ ）、低表面粗さ（ $R_a < 10\text{nm}$ ）の要求を達成するためにインク化工程で強力な分散処理を行うが、完全に分散することはできず、歩留まりも悪く、さらにITO粒子表面の酸化等により抵抗値が急激に上昇してしまうと言った問題がある。これを解決するために、ゾルゲル法を主流とした、現行法を改良又は全く新規に開発する新規単分散ITOナノ粒子合成法の開発を行い、インクジェット法に適した工業化技術開発を実施する。

2) 静電塗布用ナノインク開発

粒子合成では、大量生産の指標である、合成系の金属イオン濃度が 0.1mol/L 以上となる濃厚系での液相反応について、特に形態制御と単分散を実現するために、単分散粒子合成の一般的手法である、ゲルゾル法をさらに発展させて、ITO単分散ナノ粒子合成技術の完成を目指す。また、形態制御された比較的大型のナノ粒子（数十nm）とその大型ナノ粒子を結合させるための数nmの粒子を合成し、最密充填を実現するための分布とその分布を実現するための静電塗布法を開発する。

3) シミュレーション

ナノ粒子の形状及びその集合分布を様々に変化させる事が可能なプログラムを開発する。それを用いて、さまざまなナノ粒子形状についてのシミュレーションを行い、表面充填率とナノ粒子量との関係から、塗布剤の最適な充填率を決定する。得られた結果を実験にフィードバックする。

3. 達成目標

中間目標：平成21年度

(1) 新規ターゲット組成では、小型スパッタリングの実験装置でシート抵抗 $50\Omega/\text{sq}$ を実現する。

薄膜化スパッタ技術開発では、ITO膜厚を 100nm 以下で透過率 85% 以上（測定波長 550nm ）を達成する。

以上の結果からInの使用原単位を 40% 以上削減できることを実験的に立証する。

(2) ナノインクによる電導膜について、透過率 80% 以上、ヘイズ 2% 以下、表面抵抗率 $1000\Omega/\text{sq}$ 以下を達成可能な塗布法の開発を目標とする。

以上の結果からInの使用原単位を 6% 以上削減できることを実験的に立証する。

最終目標：平成23年度

(1) 新規ターゲット組成では、所定の諸特性（体積抵抗率 $200\sim 250\mu\Omega\text{cm}$ 、透過率は波長 550nm で 85% 以上、エッチング性、高屈折率）を満足する材料を開発する。また、新規組成ターゲット作製工程の最適化を行い高密度（ 99.5% 以上）ターゲットの工業化技術を完成させる。

薄膜化スパッタ技術開発では、スパッタリング法における大型FPD用のITO膜の厚さを両面合せて現状値 220nm から 100nm 以下とし、シート抵抗 $16\Omega/\text{sq}$ （ $160\mu\Omega\text{cm}$ ）以下、透過率 85% 以上（測定波長 550nm ）とする製造技術を開発することを目標値とする。

以上の技術を確認しInの使用原単位を 40% 以上削減できる工業化・製造技術を確認する。

(2) インクジェット法では、焼成温度 $200\sim 300^\circ\text{C}$ 、膜厚 $< 150\text{nm}$ （ $R_a < 10\text{nm}$ ）、抵抗値 $< 5 \times 10^{-3}\Omega\text{cm}$ 、透明性 $> 96\%$ （ $450\sim 800\text{nm}$ ）、耐擦性 $> 3\text{H}$ を満足するITOインクの確立を目指し、In使用原単位削減率 10% を達成可能なインクジェット用ナノインクの開発を目標とする。

静電塗布法では、塗布プロセスと条件の最適化により、焼成温度 200°C 以下で、膜厚 200nm 以下、透過率 90% 以上、ヘイズ 1% 以下、表面抵抗 $100\Omega/\text{sq}$ 以下を目指し、In使用原単位削減率 10% を達成可能な塗布法の開発を目標とする。

以上の技術を確認しInの使用原単位を 10% 以上削減できる工業化・製造技術を確認する。

上記(1)、(2)の目標達成により、現在のITO薄膜で使用されているIn使用原単位の 50% 削減を達成する。

研究開発項目②「透明電極向けインジウム代替材料開発」

1. 研究開発の必要性

現状では、フラットパネルディスプレイ用透明電極は、ほぼ全面的にマグネトロンスパッタ製膜にて蒸着されたITO透明導電膜が採用されている。酸化亜鉛系材料は、その優れた光学的・電気的特性によって、従来からITO代替材料として最も有力な候補の一つであるが、製膜の均一性、光学的・電気的特性、耐熱性、耐薬品性等の特性値について所定の目標値を満足する必要がある。

したがって、酸化亜鉛系材料を対象にITO代替材料として利用可能な材料開発を実施する。

2. 研究開発の具体的内容

(1) 酸化亜鉛系混晶材料による高性能透明電極用材料の開発

酸化亜鉛の構成元素を他の様々な元素で置換した新しい混晶半導体を開発し、酸化亜鉛系材料の電気的特性及び化学的安定性を、液晶ディスプレイ用透明電極材料として実用に耐え得る水準にまで向上させる。

(2) 酸化抑制型マグネトロンスパッタ製膜技術(材料技術を含む)の開発

1) 酸化抑制型マグネトロンスパッタ製膜技術の開発

- ・酸化抑制製膜条件の最適化
- ・製膜初期制御技術の開発

2) 低酸素含有 ZnO 系焼結体ターゲットの開発

- ・最適 ZnO 系焼結体ターゲットの開発

(3) 酸化亜鉛系液晶ディスプレイの開発

- 1) 「大型基板対応製膜技術の開発」として、大型基板（第8世代-2, 160mm × 2,460mm）に対応した製膜技術及び製膜装置の実現の見通しを得る。
- 2) 「透明導電膜部材（ZnO 薄膜）の開発」として、耐熱・耐湿性、耐薬品性などの実使用条件を満足する条件にて抵抗率変化10%以下を達成する。
- 3) 「大型液晶パネルの応用開発」として、大型液晶ディスプレイを試作し、ITO透明導電膜と同等以上の表示信頼性を確保しつつ、紫色領域・青色領域・緑色領域において、透過率最大2%増大を達成する。

3. 達成目標

中間目標：平成21年度

スパッタ技術開発及び不純物の共添加等の材料開発により、化学的安定性、均一性に優れる成膜技術を開発し、4インチレベルのパネル試作を実施する。

最終目標：平成23年度

抵抗率、透過率、耐熱性、耐湿性、耐薬品性等の透明電極として使用に耐えうる諸特性を満足し、酸化亜鉛系材料及びその成膜技術を確立する。酸化亜鉛系材料を例えば液晶ディスプレイのカラーフィルター側の透明電極に適用することにより、インジウム使用原単位の50%以上低減を達成する。

- ・抵抗率： $4.5 \times 10^{-4} \Omega \text{cm}$ 以下
- ・透過率：可視光平均透過率85%以上
- ・耐熱性：抵抗変化率 $\leq 10\%$ (230°C、大気中30分)
- ・耐湿性：抵抗変化率 $\leq 10\%$ (60°C、95%、500時間)
- ・耐薬品性：可視光透過率の変化率 $\leq 2\%$ (NaOH(5%)又はH₂SO₄(5%)室温10分浸漬)

研究開発項目③「希土類磁石向けジスプロシウム使用量低減技術開発」

1. 研究開発の必要性

現状の商用焼結磁石の保磁力は、理論値である異方性磁場（90kOe）の10%程度の値に留まっている。これはNd₂Fe₁₄B主相の結晶粒界で結晶磁気異方性が小さくなるウィークポイントが存在し、そこを起点として逆磁区が核生成するためと考えられている。よって、永久磁石の保磁力を上昇させるには、(1) 逆磁区の発生頻度を下げするために磁石粒子のサイズを小さくすること、及び(2) Nd₂Fe₁₄B相と粒界相との界面の状態を制御することが必要である。そこで、この2点を実現するための技術と指導原理を追求し、保磁力の向上を目指す。

2. 研究開発の具体的内容

(1) 「結晶粒の微細化・原料粉末最適化による保磁力向上技術の開発」

焼結磁石における結晶粒を数マイクロンサイズになるよう微細化することで、ジスプロシウム添加量を低減しても高保磁力が得られる焼結磁石の作製プロセスを確立する。

1) 次世代焼結磁石用原料合金の研究開発

結晶粒径と元素分布を制御することにより、高い保磁力が引き出せる原料合金を開発する。

2) 超微細結晶粒焼結磁石作製プロセスの開発

結晶粒径制御により高保磁力焼結磁石の作製プロセスを開発する。

3) 高保磁力磁石の焼結組織最適化に関する研究

Nd-rich相等の組織形態制御により焼結組織の最適化を図る。

(2) 「界面ナノ構造制御による保磁力向上技術の開発」

強磁場プロセス、薄膜プロセス、組織制御等を検討してNd-Fe-B系焼結磁石の界面ナノ構造を制御し、主相界面の格子整合性を向上させてジスプロシウム添加量の低減と高保磁力の実現の指針を得る。さらに、これらの指針をもとにジスプロシウムを磁石試料中で保磁力増加に効果的な部位に必要な量を添加するジスプロシウム有効活用技術を開発し、ジスプロシウム添加量の削減を図る。

1) 強磁場を用いた界面構造制御による保磁力向上の研究

強磁場熱処理による粒界相の結晶配向を用いて、この界面構造をより均一にして高保磁力化を目指す。

2) 薄膜プロセスで制御した理想界面による保磁力向上の研究

理想的な磁石薄膜と粒界相物質を成膜し、磁化反転のモデル実験を行うことにより、保磁力のメカニズムを解明する。

3) 焼結磁石の組織制御による界面ナノ構造最適化の研究

ジスプロシウムの拡散制御技術の検討により結晶粒表面にジスプロシウムを優先偏析させる技術を開発する。

(3) 「界面構造解析と保磁力発現機構解明による指導原理の獲得」

Nd-Fe-B系焼結磁石の界面ナノ構造や磁化過程の詳細な解析をすることによって、現状の保磁力が異方性磁場（90kOe）の10%程度の値に留まっていること、従来の研究から結晶粒を小さくしても保磁力がある結晶粒径で急激に低減すること、等の理由を解明し、さらには計算科学を駆使することによって保磁力向上の指導原理を獲得する。得られた情報は上記項目(1)、(2)の製造プロセスへ還元する。

1) ナノ組織解析・原子レベル元素分析による界面構造評価

焼結磁石の粒界ナノ構造を原子レベルで解析し、粒界構造と保磁力の因果関係を解明する。

2) 中性子小角散乱法による平均界面構造評価と保磁力

中性子小角散乱測定により、保磁力の起源となる磁石内部の平均界面構造を明らかにする。

3) 微小結晶粒子集団における磁化反転機構と制御法の研究開発

磁化反転機構解析により保磁力の決定要因を解明する。

4) 希土類磁石の保磁力機構に関する理論研究

第一原理計算に基づく微視的立場から焼結磁石の保磁力の発現機構を明らかにする。

(4) 「自動車用磁石への応用」

自動車用磁石、特にハイブリッド自動車の駆動モータは、現在ジスプロシウム添加Nd-Fe-B系磁石

の大きな応用先である。本研究の遂行によって高保磁力高性能な Nd-Fe-B 系磁石を開発できれば、ジスプロシウム使用量の削減が最も効果的に実施できると考えられることから、例えば開発磁石の耐久性評価、モータ適用時の磁石の最適形状設計等といった当該分野への応用について検討を行う。得られた情報は、各製造プロセスへ還元するとともに更なる高性能化への指針とする。

3. 達成目標

中間目標：平成 21 年度

結晶粒径の微細化、強磁場プロセスによる界面ナノ構造制御技術等の開発により、ジスプロシウム使用量原単位 20%削減を達成する。

最終目標：平成 23 年度

下記の各項目について目標を達成し、ジスプロシウム使用原単位を 30%以上削減可能な技術を確立する。

(1) 結晶粒径 $2\mu\text{m}$ で元素濃度分布を最適化した原料合金、並びにジスプロシウムフリーで結晶粒径 $2\mu\text{m}$ 以下の焼結磁石、における量産化技術の確立。

(2) 強磁場プロセスやジスプロシウム有効活用技術の導入等によって、高保磁力化の実現 (10kOe 増加)。

(3) 内部又は界面の微細・平均構造と保磁力との相関や磁化反転機構を明らかにし、高保磁力省ジスプロシウム磁石開発における指導原理の確立。

(4) モータ出力密度 3 倍のための開発要素の明確化。

研究開発項目④「超硬工具向けタングステン使用量低減技術開発」

1. 研究開発の必要性

本研究開発では超硬工具（切削工具）のタングステン使用原単位を30%以上低減するため、切削工具の基材部分をタングステン使用量の少ない材料に置きかえる「硬質材料のハイブリッド化」、及び工具の刃先近傍や表面以外について炭窒化チタンを主成分とする「複合構造硬質材料化」を図るための技術開発を行う。

2. 研究開発の具体的内容

(1)「ハイブリッド切削工具の開発」

焼き入れ鋼用切削工具向けに、炭窒化チタン系硬質材料基材に切削チップの先端部として cBN（立方晶窒化ホウ素）を接合し、ロウ付け cBN 切削工具と同等の切削性能を達成すると同時に、接合部には 1000℃の耐熱性をもたせる。

1) 異種材料のソリッド接合技術及びインサート材料の開発

切削工具の切刃部に要求される特性を有する硬質材料と基材となる材料を接合する技術を開発する。

2) ハイブリッド切削工具の実用化技術の開発

工業化に対応するため、実用工具における被接合材及び基材の形状設計、被接合材と基材の高精度位置決め技術等を開発する。

(2)「複合構造硬質切削工具の開発」

一般鋼及び鋳鉄用切削工具向けに、複数の硬質材料粉末を用いて粉末複合化成形した3次元ブレーカ付きM級切削チップを開発し、超硬合金工具と同等の切削性能を達成する。

1) 多相組織硬質材料の開発

多成分からなる多相組織硬質材料の焼結技術等を開発し、その特性を明らかにして超硬合金工具の機能代替を達成する。

2) 複合構造硬質切削工具の実用化技術の開発

多相組織硬質材料に3次元ブレーカが形成可能な複合構造硬質切削工具の実用化技術を開発する。

3. 達成目標

中間目標：平成21年度

(1)「ハイブリッド切削工具の開発」

従来よりもタングステン使用原単位を20%以上低減した硬質基材を開発し、先端部 cBN との接合技術を開発する。

(2)「複合構造硬質切削工具の開発」

粉末複合化成形技術の開発により、タングステン使用原単位を15%以上低減する。

最終目標：平成23年度

下記の各項目について目標を達成し、超硬工具（切削工具）のタングステン使用原単位を30%以上低減する。

(1)「ハイブリッド切削工具の開発」

1) 焼き入れ鋼用 cBN 切削工具におけるタングステン使用原単位を40%削減する。

2) 焼き入れ鋼に対する高負荷連続切削試験でロウ付けチップと同等の切削性能を達成する。

(2)「複合構造硬質切削工具の開発」

1) 一般鋼又は鋳鉄用被覆超硬工具におけるタングステン使用原単位を30%削減する。

2) 3次元ブレーカつきM級精度の複合構造硬質工具による一般鋼の断続切削試験で、コーティングを有する超硬合金と同等の切削性能を達成する。

研究開発項目⑤「超硬工具向けタングステン代替材料開発」

1. 研究開発の必要性

本研究開発は、超硬工具（切削工具、耐摩耗工具）のタングステン使用原単位を30%以上低減するため、WC基超硬合金に代わる硬質材料として有望な炭窒化チタン（Ti(C,N)）基サーメットについて、新規サーメット基材の開発及び新規サーメットを基材とした新規コーティング技術の開発を行い、切削工具及び耐摩耗工具に適用するサーメット及びコーティング技術を開発する。

2. 研究開発の具体的内容

（1）「サーメット及びコーティングの基盤研究」

サーメットの解析技術及び設計技術の開発、及び新規サーメット材料を開発するとともに、新規コーティング技術を開発する。具体的には以下の3項目を実施する。

1) 「サーメットの解析及び設計技術の開発」

組織、特性及び焼結性等に関する基盤技術を確立する。

2) 「新規サーメット材料の開発」

サーメットの組織や焼結収縮をより均一化し材料特性を改良するために、原料粉末として従来の単純な混合粉末ではなく、あらかじめ固溶体化した粉末を用いてサーメットを製造し、組織や特性を評価する。

3) 「コーティング技術の開発」

サーメット基材上への安定したコーティングを可能とするために、コーティング時の加熱温度を低温化した新規CVDコーティング技術の開発を行う。

（2）「切削工具用サーメット及びコーティング技術の開発」

上記（1）の成果を活用して、切削工具としてスローアウェイ切削工具や軸物切削工具（穴あけドリル）用のサーメットを対象とし、強度、靱性、熱衝撃性等の材料特性の最適化、成形・焼結プロセス技術の確立、コーティング向け積層化・傾斜組成化技術の確立、切削工具向けコーティング技術の確立等を行う。開発したサーメット及びコーティングにより切削工具を作製し、これにより、鋼やアルミニウム合金等の総合的切削性能を達成する。

（3）「耐摩耗工具用サーメット及びコーティング技術の開発」

上記（1）の成果を活用して、耐摩耗工具として線引きダイス・プラグ等用の高硬度型サーメット及び製缶工具・圧粉金型等の高靱性型サーメットを対象とし、強度、靱性、熱衝撃性等の材料特性の最適化、サーメット大型部材の成形・焼結技術の確立、被研削性・放電加工性等の改良、耐摩耗工具向けコーティング技術の開発等を行う。開発したサーメット及びコーティングによりダイス・プラグ用及び金型用耐摩耗工具を作製し、これにより、ダイス・プラグ及び金型としての総合的耐摩耗工具性能を達成する。

3. 達成目標

中間目標：平成21年度

下記の各項目について技術を確立する。

- ・サーメットの組織形成シミュレーション技術
- ・新規固溶体粉末を用いたサーメット合成技術
- ・新規コーティング技術

最終目標：平成23年度

下記の各項目について目標を達成し、新規炭窒化チタン（Ti(C,N)）基サーメット材料を開発することで、WC基超硬工具（切削工具、耐摩耗工具）よりもタングステン使用原単位を30%以上低減する。

（1）「サーメット及びコーティングの基盤研究」

1) 「サーメットの解析及び設計技術の開発」

積層体焼結（共焼結）のシミュレーション技術の確立と耐熱衝撃性や高温強度の機構を解明する。さらに、組織形成と破壊メカニズムを解明する。また、成形体構造評価技術を確立し、最終的に設計に必要なデータベースを構築する。

2) 「新規サーメット材料の開発」

下記の特性値を満足する新規サーメット材料を開発する。

- ・抗折力：3GPa
- ・破壊靱性値：15MPa・m^{1/2}
- ・耐熱衝撃抵抗：75W・m^{-1/2}

3) 「コーティング技術の開発」

サーメット基材上への安定したコーティングを可能とするために、コーティング時の加熱温度を低温化（800℃）した新規CVDコーティング技術の開発を行う。

（2）「切削工具用サーメット及びコーティング技術の開発」

切削工具用サーメットの成形・焼結技術、傾斜組成化技術等を確立し、下記の特性値を達成する。

- ・破壊靱性値：13MPa・m^{1/2}
- ・熱伝導率：30W/m・K
- ・サーメット工具による鋼等の総合的切削性能

このことで、軽切削用スローアウェイ工具で約70%、穴明けドリル用（軸物）切削工具で約70%のタングステン使用原単位の低減を実現する。

（3）「耐摩耗工具用サーメット及びコーティング技術の開発」

耐摩耗工具用サーメットの成形・焼結技術、研削・放電加工技術等を確立し、下記の特性値を達成する。

- ・硬さHV \geq 1400 で破壊靱性 13MPa・m^{1/2} 以上の高硬度型サーメット
- ・硬さHV \geq 1200 で破壊靱性 15MPa・m^{1/2} 以上の高靱性型サーメット
- ・サーメット工具によるダイス及び金型の総合的耐摩耗工具性能

このことで、ダイス・プラグ用耐摩耗工具で100%、金型用耐摩耗工具で約94%のタングステン使用原単位の低減を実現する。

研究開発項目⑥-1「排ガス浄化向け白金族使用量低減技術開発及び代替材料開発」
(遷移元素による白金族代替技術及び白金族の凝集抑制技術を活用した白金族低減技術の開発)

1. 研究開発の必要性

白金族は、自動車排ガス触媒を中心とする各種触媒、電気電子機器等に用いられており、排ガス触媒向けを中心に世界的に需要が増加している。白金の新地金生産は年間約 210 t であり、その 90% 以上を南アフリカとロシアが担っている。白金の国内需要はおよそ 36 t、うち 27 t が自動車触媒向けであるが、供給の 80% を南アフリカに依存している。一方、南アフリカにおいては、近年設備や安全上の問題による鉱山閉鎖、電力不足による操業停止等、供給懸念が顕在化している。

今後、世界的な自動車需要の増加、及び特に日本・欧州を中心としたディーゼル排ガス規制の強化により、排ガス触媒向け白金族の需要が拡大すると見込まれる白金生産の 90% を南アフリカとロシアが担っていることから、将来の排ガス触媒等の需要拡大に対する供給不足が発生し、わが国の産業において成長阻害の懸念がある。

本研究開発は、自動車排ガス触媒等の白金族使用原単位を 50% 以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

本プロジェクトは、ディーゼル車両の排気ガス浄化触媒中の白金族使用量を 50% 以上低減するために、遷移元素による白金族代替技術及び白金族凝集抑制技術を軸として、白金族使用量を低減した酸化触媒 (DOC : Diesel Oxidation Catalyst)、リーン NO_x トラップ触媒 (LNT : Lean NO_x Trap Catalyst)、ディーゼルパーティキュレートフィルター (DPF : Diesel Particulate Filter) 用触媒を実現するとともに、プラズマによる触媒活性向上技術、酸化触媒と DPF 用触媒といった異なる触媒の機能統合化技術を組合せたディーゼル向け排ガス浄化触媒システムを実現化することを目的とする。

(1) 遷移元素による白金族代替に関する研究開発

遷移元素化合物の活性点の活性原理を明らかにするとともに、DOC、LNT、DPF に必要な機能を明確化し、遷移金属化合物を使った活性点候補を決定する。また、DOC、LNT、DPF に対し、白金族使用量を減らした時に不足する機能を明確化し、遷移金属に置き換えた時の助触媒等の活性向上策を決定する。

(2) 白金族凝集抑制手段に関する研究開発

低温時の活性が高い白金、ロジウム、パラジウムの各最適粒子サイズ、最適担体を明確化する。また、耐久試験後に触媒活性の低下が小さい最適粒子サイズを保てる凝集 (シンタリング) 抑制手法を開発する。

(3) DPF の反応向上要素とその実現に関する研究開発

PM (パーティキュレート・マター) の反応モデルの決定、DPF の触媒担持モデルの構築と、DPF への触媒担持位置の明確化を行う。また、DPF の触媒担持における制御因子、PM の酸化特性を明確化し、耐熱試験後に触媒特性が確保できる触媒担持位置を特定する。

(4) プラズマによる活性向上に関する研究開発

プラズマによる触媒の反応性向上原理の解明、触媒設計指針の明確化と触媒の改良、プラズマ反応を受けやすい触媒構造と組成の決定を行う。

(5) 排気触媒統合化に関する研究開発

現行の触媒システム (「DOC」+「LNT」+「DPF」の 3 つの触媒からなるシステム) の機能統合化 (「DOC+DPF」+「LNT」等からなるシステム) のために、DOC 機能の明確化、PM 浄化に対する課題の明確化、触媒システムの機能を統合化した時の課題を明らかにして、解決方法を確立し、システムの構成を決定する。

(6) 遷移元素化合物の実触媒化、量産化に関する研究開発

DOC、LNT、DPF それぞれの触媒について、実触媒化、量産化技術を確立するために、使用量低減に対する課題の明確化と課題の解決方法の立案、耐久試験後 (触媒入口温度 700℃ で 100 時間後) の特性が保たれる触媒仕様の明確化と仕様決定を行う。

3. 達成目標

ディーゼルエンジンの排ガス浄化向け触媒の白金族使用原単位を50%以上低減する基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

中間目標：平成23年度

- (1) 遷移元素による白金族代替に関する研究開発
 - ・遷移元素酸化物によるTG測定法（TG：Transient Grating Method 過渡回折格子法）を開発する
 - ・DOC、LNT、DPF触媒用として触媒活性の向上策を決定し耐熱性向上技術の確立を行う
 - ・DOC、LNT、DPF触媒用として遷移元素活性点候補を3つ以上決定する
- (2) 白金族凝集抑制手段に関する研究開発
 - ・TGを用い低温活性に最適なPdの最適サイズ、最適担体を明確化する
 - ・Pt、Rhを使い最適な担体で耐久試験後の貴金属サイズを実現する
- (3) DPFの反応向上要素とその実現に関する研究開発
 - ・反応モデルの妥当性を検証し、PM反応モデルを決定する
 - ・DPFの反応性を向上させる触媒担持位置を明確にする
 - ・DPFの触媒担持時における重要な制御因子を明らかにする
 - ・PMの酸化特性を明らかにする
- (4) プラズマによる活性向上に関する研究開発
 - ・触媒に必要な機能を列挙し、試作・評価により触媒設計指針を明確にする
 - ・常温にて酸素共存下で十分に機能するNO_x分解触媒を絞り込む
 - ・ハニカム、繊維等の構造やアルミナ等材料組成を検討し、プラズマに効果的な支持体構造と組成を選定する
- (5) 排気触媒統合化に関する研究開発
 - ・白金族、白金族代替を用いた統合化した触媒システム全体での課題を明らかにする
 - ・解決策の具体案の検証を行い、耐久試験前で白金族使用量を85%低減可能な統合化システムを決定する
- (6) 遷移元素化合物の実触媒化、量産化に関する研究開発
 - ・耐久試験前において、DOCの白金族使用量60%低減を可能とする触媒仕様を決定する
 - ・耐久試験前において、LNTの白金族使用量75%低減を可能とする触媒仕様を決定する
 - ・耐久試験前において、DPFの白金族使用量65%低減を可能とする触媒仕様を決定する

最終目標：平成25年度

- (1) 現行の触媒システム（「DOC」＋「LNT」＋「DPF」の3つの触媒からなるシステム）について、平成21年10月に施行される排出ガス規制（ポスト新長期対応ディーゼル排気ガス基準）をクリアした、耐久試験後の触媒特性が確保できる触媒仕様を決定する。
 - ・ディーゼルシステム全体：白金族使用量50%以上低減（自主目標70%低減）
 - ・DOC単体：白金族使用量50%以上低減（自主目標60%低減）
 - ・LNT単体：白金族使用量50%以上低減（自主目標75%低減）
 - ・DPF単体：白金族使用量50%以上低減（自主目標65%低減）
- (2) 触媒機能を統合化した触媒システム（「DOC＋DPF」＋「LNT」等からなるシステム）について、平成21年10月に施行される排出ガス規制（ポスト新長期対応ディーゼル排気ガス基準）をクリアした、耐久試験後の触媒特性が確保できる触媒仕様を決定する。
 - ・ディーゼルシステム全体：白金族使用量50%以上低減（自主目標85%低減）

研究開発項目⑥-2「排ガス浄化向け白金族使用量低減技術開発及び代替材料開発」
(ディーゼル排ガス浄化触媒の白金族使用量低減化技術の開発)

1. 研究開発の必要性

白金族は、自動車排ガス触媒を中心とする各種触媒、電気電子機器等に用いられており、排ガス触媒向けを中心に世界的に需要が増加している。白金の新地金生産は年間約 210 t であり、その 90%以上を南アフリカとロシアが担っている。白金の国内需要はおよそ 36 t、うち 27 t が自動車触媒向けであるが、供給の 80%を南アフリカに依存している。一方、南アフリカにおいては、近年設備や安全上の問題による鉱山閉鎖、電力不足による操業停止等、供給懸念が顕在化している。

今後、世界的な自動車需要の増加、及び特に日本・欧州を中心としたディーゼル排ガス規制の強化により、排ガス触媒向け白金族の需要が拡大すると見込まれる白金生産の 90%を南アフリカとロシアが担っていることから、将来の排ガス触媒等の需要拡大に対する供給不足が発生し、わが国の産業において成長阻害の懸念がある。

本研究開発は、自動車排ガス触媒等の白金族使用原単位を 50%以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

本プロジェクトは、ディーゼル排ガス浄化触媒システムにおいて、大量の白金族が使用されている酸化触媒 (DOC : Diesel Oxidation Catalyst) と触媒付ディーゼルパーティキュレートフィルター (DPF : Diesel Particulate Filter) を対象とし、白金族金属の使用量を 50%以上低減するための技術開発を実施する。基盤からプロトタイプ触媒製造までの必要な技術をシームレスにバランス良く取り組むことにより、大型ディーゼル車を主たる対象として白金族金属の使用量を低減し、かつ高い浄化性能を持つディーゼル排ガス浄化触媒システムの開発を目的とする。

(1) 白金族使用量を低減したディーゼル酸化触媒の開発

ディーゼル酸化触媒を対象として、以下の検討を相互補完的に実施し、HC/CO浄化性能、軽油燃焼性能、NO酸化性能を有する高活性・高耐久性触媒を開発する。

1) 触媒活性種の探索と高度設計

触媒活性種である白金族金属と担体、白金族金属間及び添加物との相互作用を制御することにより、協奏的な効果により高い活性・安定性を有する触媒活性種組成や構造を明らかにする。

2) 触媒種複合化技術の開発

触媒性能を最大限に発現させるために、複数の触媒活性種及び触媒担体をナノスケールで精密に合成し、それらを複合化する触媒調製技術の開発研究を行う。

3) 担体の設計と高度化

白金粒子の凝集の抑制と燃料や潤滑油ミストによる細孔閉塞を回避できる細孔構造を階層的に多元構造化した、硫黄分に対する化学的耐性を有する担体の開発を行う。

4) 要素技術統合による実用候補触媒材料の抽出

各要素技術を相互補完ならびに技術統合することにより、白金族使用量低減につながる触媒設計・合成技術を確立し、高性能な実用候補触媒の抽出を行う。

(2) 白金族代替DPF用触媒の開発

触媒付ディーゼルパーティキュレートフィルターを対象として、粒子状物質を直接酸化できる白金族代替触媒の開発を行う。具体的には、これまで高いスス燃焼性能を有することが見出されている銀触媒の実用条件における活性を向上させ、白金触媒の活性へ近づけることで白金族代替銀触媒を開発する。また、銀触媒のスス燃焼作用機構を解明するためのキャラクタリゼーションを実施する。

(3) 触媒の部材化技術とシステム構築

項目(1)及び(2)で開発された新触媒材料について以下の検討を実施し、部材化の観点から白金族金属の使用効率向上を図る。

1) ハニカム基材へのコート技術の最適化

多層化、機能分離あるいは機能傾斜コート技術により、白金族使用量を低減した高性能新規酸化触媒及び高性能の白金族代替DPF触媒を開発する。

2) 触媒システム構築

開発した酸化触媒及び触媒付DPFの実用性評価を実施し、これらを白金族低減という観点で最も効率的に組み合わせる排ガス処理触媒システムの設計を行う。

(4) 実用触媒製造技術の確立

項目(1)～(3)で得られた成果を統合し、実用化のための開発として以下の検討を実施し、プロトタイプ触媒の試作と評価を行い、実用化の目途をつける。

1) 触媒の改良

確立した各要素技術のブラッシュアップを図り、抽出した有望な実用候補触媒群の実用性能改良を実施する。

2) 触媒大量調製技術の開発

プロトタイプ触媒の試作に向けて有望な実用候補触媒を大量に調製するための技術開発を行う。

3) プロトタイプ触媒の試作・評価

実機サイズのハニカム及びDPFにコーティングした触媒を試作し、実機を用いたベンチ評価を行う。

3. 達成目標

ディーゼルエンジンの排ガス浄化向け触媒の白金族使用原単位を50%以上低減する基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

中間目標：平成23年度

(1) 白金族使用量を低減したディーゼル酸化触媒の開発

・活性種・複合化・担体高度化技術：活性・安定性が高く、実用的な反応条件の変動にも対応できる触媒活性種を開発する。複合ナノ粒子を担体に固定化する技術を開発する。担体の長期性能改良の指針を得るとともに、触媒活性種を効果的に担持する技術を開発する。

・担体設計実用化技術：担体用粉末粒子の試作規模をパイロットレベルに高めて実証試験を行うとともに、実排ガス試験用の担体用粉末を提供する。

・触媒機能高度化技術：解明された触媒活性の制御因子に基づいた白金族使用量低減につながる触媒設計指針を提案する。

・複合ナノ粒子調製技術：解明された触媒成分金属の複合化に関する知見に基づき、白金族使用量低減につながる触媒設計指針を提案する。

・実用候補触媒の抽出：以上の技術に基づき、模擬排ガスをを用いた条件で白金族使用量を従来より40%低減した酸化触媒を開発する。

(2) 白金族代替DPF用触媒の開発

・非白金族系DPF用触媒のスス燃焼温度400℃以下を達成し、白金族使用量を40%低減したDPF触媒を開発する。

(3) 触媒の部材化技術とシステム構築

・従来と比較して白金族使用量を10%低減できる機能分離コート技術を開発するとともに、各研究項目を総合した実用的なディーゼル排ガス触媒システムを提案する。

最終目標：平成25年度

(1) 実用触媒製造技術の確立

平成21年10月に施行される排出ガス規制(ポスト新長期対応ディーゼル排気ガス基準)をクリアし、白金族使用量を50%以上低減した触媒システムを開発する。

・750℃、50時間の耐久に耐えるディーゼル酸化触媒を開発する。

・800℃、50時間の耐久に耐えるDPF用触媒を開発する。

・プロトタイプ触媒の試作に向けて有望な実用候補触媒を大量に調製するための技術を確立する。

・開発した触媒について、実機サイズのハニカムとDPFを用いた触媒システムでトラックエンジンを用いたベンチ評価を行い、課題を確認する。この課題を解決し、実用性をもった触媒システムを開発する。

研究開発項目⑦-1「精密研磨向けセリウム使用量低減技術開発及び代替材料開発」
(代替砥粒及び革新的研磨技術を活用した精密研磨向けセリウム低減技術の開発)

1. 研究開発の必要性

セリウムは、フラットパネルディスプレイのパネルガラス、パソコン用ハードディスクドライブ内のガラスディスクの研磨材として用いられている。世界最大のレアアース供給国である中国からの輸出統計によれば、わが国は世界最大のセリウム消費国である(内需データが不明な中国を除く)。わが国におけるセリウム需要の過半(5割以上)は、研磨材向けの需要によって占められており、その消費量は平成19年現在9,000t(酸化物換算)ほどと推計されている。

今後、テレビのフラット化進行などにより、全世界でフラットパネルディスプレイの主要用途である薄型テレビの生産拡大が見込まれること、また新興国等におけるIT化進行等によりハードディスクドライブの主要用途であるパソコンの生産拡大が見込まれること等から研磨材料向けセリウムの需要も拡大するものと思われる。

希土類元素(レアアース)であるセリウムは、全世界における供給の9割強を中国が担っていることから、将来の研磨材料等の需要拡大に対する供給不足が発生し、わが国の産業において成長阻害の懸念がある。

本研究開発は、研磨材料等のセリウム使用原単位を30%以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

本プロジェクトは、精密研磨向けセリウム使用原単位を30%以上低減するために、代替砥粒の要求特性解明と代替砥粒の開発、革新的研磨技術を活用した研磨要素技術と研磨プロセス技術開発を行うことを目的とする。財団法人三重県産業支援センター高度部材イノベーションセンター(AMIC)に集中研究室を設置して研究開発を実施する。

(1) 研磨メカニズムの解明と代替砥粒の設計

量子分子動力学シミュレーションと実験による研磨メカニズムの解明を行うことで、研磨に対する詳細なメカニズム解明を迅速に進めるとともに、精密な代替砥粒の設計を実現する。

(2) 代替砥粒の研究開発

ペロブスカイト複合酸化物と既存砥粒改良型酸化物の両開発を迅速に行い有用な代替砥粒を得る。

(3) 革新的な遊離砥粒研磨メカニズムに基づく酸化セリウム使用量削減要素技術開発

フェムト秒レーザー等を使用したガラス研磨前処理技術の確立と砥粒による研磨速度向上技術の確立、酸化セリウム砥粒使用量削減遊離砥粒研磨技術を確立するために電界砥粒制御技術・トライボケミカル研磨技術の開発、ラジカル環境場を考える革新的融合研磨技術とその開発、研磨副資材の研究開発を実施することにより、酸化セリウム使用量を削減する革新的な研磨メカニズムに基づく精密研磨の要素技術を開発する。

(4) 革新的オングストロームオーダー表面創製技術の開発

(1)～(3)の研究開発を統合し、フラットパネルディスプレイのパネルガラス向け電界砥粒制御技術融合研磨技術を導入する片面大型迅速精密研磨の開発、及びハードディスクドライブ向けガラスディスク用両面超精密研磨技術の開発並びに省酸化セリウム遊離砥粒研磨技術を確立するための電界砥粒制御技術融合研磨技術の確立を行う。

3. 達成目標

精密研磨向けセリウムの使用原単位を30%以上低減する基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

中間目標：平成23年度

(1) 研磨メカニズムの解明と代替砥粒の設計

- ・量子分子動力学シミュレーションによる酸化セリウムによる研磨プロセスの電子論的メカニズムの解明及び、既存砥粒と単純ペロブスカイト酸化物をモデル材とした研磨メカニズムの解析によるモデル材の組成・構造と研磨特性の関連性を明らかにする。

(2) 代替砥粒の研究開発

- ・既存砥粒の研磨性能の把握・改良及び、複合酸化物を用いた代替砥粒構築プロセスの開発に

より、ラボレベルで酸化セリウム使用量の5%の代替を達成する。

- (3) 革新的な遊離砥粒研磨メカニズムに基づく酸化セリウム使用量削減要素技術開発
 - ・電界配置制御された砥粒とガラス試料面における摩擦摩耗による化学反応を援用する研磨技術の創出及びガラス基板と砥粒もしくはその分散媒が活発なラジカル反応場を醸成あるいはフェムト秒レーザー等によるガラスの前処理の導入検討し、革新的な研磨技術を組み合わせた高度な精密研磨要素技術として従来研磨効率の30%向上を達成する。
- (4) 革新的オングストロームオーダー表面創製技術
 - ・要素技術を、高速電界トライボ片面研磨技術及び革新的な前処理技術を導入する両面研磨技術に適応することにより、ラボレベルで酸化セリウム使用量を10%削減する精密研磨システム技術を実験的に確立する。

最終目標：平成25年度

- (1) 研磨メカニズムの解明と代替砥粒の設計
 - ・研磨プロセスシミュレータとコンビナトリアル計算化学手法を融合による酸化セリウム代替砥粒の理論的最適化及び、既存砥粒と単純ペロブスカイト酸化物をモデル材とした研磨メカニズムの解析による材料特性とその特性が研磨に関与する機構を明らかにする。
- (2) 代替砥粒の研究開発
 - ・代替砥粒と研磨パットの最適化及び、複合酸化物を用いた代替砥粒の開発により、ラボレベルで酸化セリウム使用量の10%代替を達成する。
- (3) 革新的な遊離砥粒研磨メカニズムに基づく酸化セリウム使用量削減要素技術開発
 - ・酸化セリウム代替砥粒で構成したスラリーによる高効率な研磨要素技術開発及びガラス基板表面にフェムト秒レーザーやラジカル場を醸成しつつ研磨を試行し、要素技術として従来研磨効率の40%向上を達成する。
- (4) 革新的オングストロームオーダー表面創製技術
 - ・要素技術開発の成果を、高速電界トライボ片面研磨技術及び革新的な前処理技術を導入する両面研磨技術に適応し、最適化することで、ラボレベルで酸化セリウム使用量を20%削減する精密研磨システム技術を開発する。

研究開発項目⑦-2「精密研磨向けセリウム使用量低減技術開発及び代替材料開発」
(4 B O D Y 研磨技術の概念を活用したセリウム使用量低減技術の開発)

1. 研究開発の必要性

セリウムは、フラットパネルディスプレイのパネルガラス、パソコン用ハードディスクドライブ内のガラスディスクの研磨材として用いられている。世界最大のレアアース供給国である中国からの輸出統計によれば、わが国は世界最大のセリウム消費国である(内需データが不明な中国を除く)。わが国におけるセリウム需要の過半(5割以上)は、研磨材向けの需要によって占められており、その消費量は平成19年現在9,000t(酸化物換算)ほどと推計されている。

今後、テレビのフラット化進行などにより、全世界でフラットパネルディスプレイの主要用途である薄型テレビの生産拡大が見込まれること、また新興国等におけるIT化進行などによりハードディスクドライブの主要用途であるパソコンの生産拡大が見込まれることなどから研磨材料向けセリウムの需要も拡大するものと思われる。

希土類元素(レアアース)であるセリウムは、全世界における供給の9割強を中国が担っていることから、将来の研磨材料等の需要拡大に対する供給不足が発生し、わが国の産業において成長阻害の懸念がある。

本研究開発は、研磨材料等のセリウム使用原単位を30%以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

本プロジェクトは精密研磨における酸化セリウムの使用量を30%以上低減するため、(a)従来と同等以上の研磨特性を有し酸化セリウムの成分比を30%削減した研磨材を開発すること、および(b)従来と同等の酸化セリウムの使用量で研磨能率を40%以上向上することを目指す。従来の遊離砥粒研磨技術では研磨能率が向上すると、それに呼応して仕上げ面粗さも悪化する。これに対して新しい研磨技術である4 B O D Y 研磨技術の複合粒子研磨法ではこうしたトレードオフの関係が打破され、高い研磨能率と優れた仕上げ面粗さをともに達成することができる。こうした観点から4 B O D Y 研磨技術の4つの要素である、砥粒、メディア粒子、工具(研磨パッド)、プロセス技術に注目し、それぞれに関した開発を実施することで総合的にガラス質工作物の精密研磨における酸化セリウムの使用量低減に関する基盤技術の開発を行うことを目的とする。

(1) 複合砥粒の研究開発

酸化セリウムの成分比を30%以上削減し、従来研磨と同等以上の研磨特性を達成する無機複合砥粒を開発する。その条件を満足する無機複合砥粒の構造や成分、化学的表面特性、幾何学的特徴を見出す研究開発を実施する。また、コア部に有機物や空孔、シェル部に酸化セリウム(あるいは代替酸化物)を配置したコアシェル構造を有し、かつ従来研磨と同等以上の研磨特性を達成する有機無機複合砥粒を開発する。この際、最適な有機物の材質や機械的特性、コア部の比重等を探索する研究開発を実施する。

(2) メディア粒子を用いた研磨技術の研究開発

研磨能率と仕上げ面粗さなど従来研磨のトレードオフの関係を打破し、従来研磨と同等以上の仕上げ面粗さで高研磨能率を達成するため、加工域に砥粒、工具(研磨パッド)、工作物、メディア粒子の4種類の固体(4 B O D Y)が存在する立命館大学谷が新たな概念として提案した複合粒子研磨技術の概念を適用し、その4番目の要素であるメディア粒子について、最適の物質を探索する研究開発を実施する。メディア粒子としては親水性無機粒子と親水化処理を施した有機粒子の適用を検討し、最適の親水化処理についても検討する。

(3) 研磨特性を向上させる研磨パッドの研究開発

化学的作用を活性化し研磨能率を高める可能性のある新しい素材からなる研磨パッドに関する研究開発、およびフラットパネルディスプレイ基板のように大型工作物に関しても工作物中央部の加工域へのスラリーの侵入を容易にし、工作物全面にわたって高能率に均質な研磨を実現する新しい構造を持った研磨パッドに関する研究開発を実施する。この際、研磨パッドに含有させる物質の作用メカニズムの明確化、工具に要求される物理的因子を明確化し、その物質の材質や幾何学的特性を最適化する。

(4) プロセス技術の研究開発

水和膜の生成機能が高い軟質ガラス質工作物に対して全く砥粒を使用しない加工技術としてパッドエッチング法の適用を検討するための研究開発、および水和膜の生成機能がきわめて低い硬質の水晶に対して水晶独自の特性である圧電効果を利用し研磨中に共振状態を実現して研磨能率を高める技術に関する研究開発を実施する。本研究項目ではそれぞれの装置開発と本技術に適した研磨パッドの開発およびプロセス技術の確立を目指す。

3. 達成目標

精密研磨向けセリウムの使用原単位を30%以上低減する基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

中間目標：平成23年度

(1) 複合砥粒の研究開発

1) 無機複合砥粒の開発

- ・酸化セリウムの成分割合を30%以上減じ、代表的なガラス素材であるソーダガラスに対して従来の酸化セリウム砥粒と同等の研磨特性(研磨能率と仕上げ面粗さの比が同一)を実現する無機複合砥粒を見出す。

2) 有機無機複合砥粒の開発

- ・代表的なガラス素材であるソーダガラスに対して従来の酸化セリウム砥粒の研磨特性(研磨能率と仕上げ面粗さの比)の1.4倍以上の研磨特性を実現する有機無機複合砥粒を見出し、サンプルが提供できる状態にする。

(2) メディア粒子を用いた研磨技術の研究開発

1) 有機メディア粒子を用いた研磨技術の研究開発

- ・代表的なガラス素材であるソーダガラスに対して従来の酸化セリウム砥粒の研磨特性(研磨能率と仕上げ面粗さの比)の1.2倍の研磨特性を実現する有機メディア粒子を見出し、サンプルが提供できる状態にする。

2) 無機メディア粒子を用いた研磨技術の研究開発

- ・代表的なガラス素材であるソーダガラスに対して従来の酸化セリウム砥粒の研磨特性(研磨能率と仕上げ面粗さの比)の1.4倍の研磨特性を実現する無機メディア粒子を見出し、サンプルが提供できる状態にする。

(3) 研磨特性を向上させる研磨パッドの研究開発

1) 多孔質熱硬化性樹脂研磨パッドの研究開発

- ・代表的なガラス素材であるソーダガラスに対して従来の多孔質ウレタン研磨パッドあるいはセリアパッドと比較して、1.4倍以上の研磨特性(研磨能率と仕上げ面粗さの比)を実現する多孔質研磨パッドを見出し、サンプルが提供できる状態にする。

2) 隙間調整型研磨パッドの研究開発

- ・直径200mmのソーダガラスの工作物に対してうねりを発生させることなく均質に研磨することが可能な研磨パッドを見出し、サンプルが提供できる状態にする。

(4) プロセス技術の研究開発

1) パッドエッチング技術の研究開発

- ・代表的なガラス素材であるソーダガラスに対して従来の酸化セリウムを用いた研磨の研磨特性(研磨能率と仕上げ面粗さの比)と同等の研磨特性を実現するパッドエッチング技術を確立する。

2) 共振研磨技術の研究開発

- ・水晶の研磨特性(研磨能率と仕上げ面粗さの比)を従来の1.1倍以上にする研磨技術を実現する。

最終目標：平成25年度

(1) セリウム使用量低減に寄与する複合砥粒の開発

- ・酸化セリウム使用量低減率30%の無機複合砥粒を開発する
- ・酸化セリウム使用量低減率30%の有機無機複合砥粒を開発する

(2) セリウム使用量低減に寄与する複合粒子研磨法のメディア粒子の開発

- ・研磨能率40%以上向上できる有機メディア粒子を開発する
- ・研磨能率40%以上向上できる無機メディア粒子を開発する

(3) セリウム使用量低減に寄与する研磨パッドの開発

- ・研磨能率40%以上向上できる研磨パッドを開発する

- ・大型工作物の均一研磨を実現する
- (4) セリウム使用量低減に寄与するプロセス技術の開発
 - ・軟質工作物に対して砥粒フリーの研磨技術を開発する
 - ・水晶の研磨能率を20%以上向上する

研究開発項目⑧「蛍光体向けテルビウム・ユウロピウム使用量低減技術開発及び代替材料開発」
(高速合成・評価法による蛍光ランプ用蛍光体向け Tb、Eu 低減技術の開発)

1. 研究開発の必要性

テルビウムは、照明用三波長ランプ（蛍光灯）や液晶テレビのバックライトの蛍光体（緑色蛍光体の付活体）として用いられている。ユウロピウムも同様に照明用三波長ランプや液晶テレビのバックライト用蛍光体（赤色蛍光体の付活体）として用いられている。世界最大のレアアース供給国である中国からの輸出統計によれば、わが国は世界最大のテルビウム、ユウロピウム消費国である（内需データが不明な中国を除く）。わが国におけるテルビウム需要の過半（7～8割）は蛍光粉向けの需要によって占められており、その消費量は平成19年現在100t（酸化物換算）ほどと推計されている。また、ユウロピウム需要のほぼ全量は蛍光粉向けの需要によって占められており、その消費量は平成19年現在70t（酸化物換算）ほどと推計されている。

今後、地球温暖化対策及び省エネルギー対策の進展を受けた白熱電灯から蛍光灯への切替拡大により、全世界で照明用三波長ランプの生産拡大が見込まれること、またテレビのフラット化進行などにより、全世界で液晶テレビのバックライトの生産拡大が見込まれることなどから蛍光粉向けテルビウム・ユウロピウムの需要も拡大するものと思われる。

希土類元素（レアアース）であるテルビウム・ユウロピウムは、全世界における供給の9割強を中国が担っていることから、将来の蛍光粉等の需要拡大に対する供給不足が発生し、わが国の産業において成長阻害の懸念がある。

本研究開発は、蛍光灯等のテルビウム・ユウロピウム使用原単位を80%以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

本プロジェクトは、蛍光ランプの蛍光体に含まれる Tb、Eu の使用量を80%以上低減するために蛍光ランプ用の材料及び新規製造プロセスの開発を行う。最新の高速理論計算手法、材料コンビナトリアルケミストリを用いて Tb、Eu 低減型蛍光体の開発、ランプの光利用効率を高めるガラス部材の開発を行う。また、これらの材料のランプシステムの適合性を高速で評価する基盤技術を確認する。製造プロセスとしては、製造工程の低温化技術の開発、蛍光体種別分離再利用技術の開発を行う。

(1) 蛍光体の Tb、Eu 使用量低減技術の開発

本項目では、高速量子化学計算による組成設計指針を利用しつつ、融解合成および粉体流動合成コンビナトリアルケミストリという蛍光体に適したコンビナトリアル合成を用いて、実用的なレベルの発光効率を持ち Tb、Eu の使用を30%低減した新規蛍光体、熱・光照射に対して安定な希土類代替蛍光体を見出す。また、これらの新規蛍光体の量産技術の開発を行う。

(2) ランプ部材の開発

本項目では、ランプ中の保護膜部材として使用する発光シリカガラス粉末等の開発とランプ中で発生した可視光を効率よく外部に取り出すためのガラス管の表面処理技術の開発を行う。これらによってランプ光束を向上させ、Tb、Eu の使用を30%以上低減する。また、開発されたガラスの量産方法について検討し、適切な量産方法について目処をつける。

(3) ランプシステムにおける最適化・蛍光体省使用製造技術の開発

本項目では項目(1)及び(2)で開発された材料についてランプでの適合性を高速で評価する技術を開発することで材料開発を加速する。また、開発された部材の光学的特性等をシミュレーション技術によって光利用効率等を最適化し、ランプ試作を行い、最終的な目標である蛍光ランプにおける Tb、Eu の使用量を低減する。また製造工程における蛍光体のロスをも20%以上低減するために、蛍光体塗布プロセスの低温化と蛍光体種別分離再利用技術の開発を行う。

3. 達成目標

蛍光体向け Tb、Eu の使用原単位を現状から80%以上低減する基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

中間目標：平成23年度

(1) 蛍光体の Tb、Eu 使用量低減技術の開発

- ・ X線構造解析シミュレーターの開発による蛍光体構造の決定、高速化量子化学計算を利用して蛍光体の発光効率を予測するまでの手法を確立し、少なくとも一つ実証例を示す。
 - ・ ランプでの適合性、量産性に問題のない Tb、Eu の使用を 20% 低減できる蛍光体の組み合わせを提示する。
 - ・ 蛍光体の励起発光メカニズム、劣化メカニズムの組成依存性を明らかにする。
この見出された蛍光体の量産技術について目途をつける。
- (2) ランプ部材の開発
- ・ 従来のガラス・蛍光体と組み合わせて 15% 以上高い光束を実現できるシリカ皮膜を開発する。
 - ・ 全方位光に対して従来のガラス管より 10% 以上の取り出し効率を有するガラスを開発する。
量産化の方法について目途をつける。
- (3) ランプシステムにおける最適化・蛍光体省使用製造技術の開発
- ・ 蛍光体等の高速評価法を実際の材料に適用し、改良した上で方法論として確立する。
 - ・ 開発された材料を用いて実ランプ試作を行い性能試験を行い最終目標に向けての問題点を明確にする。
 - ・ 各材料の光束向上への寄与を定量的に明らかにする。
 - ・ ハロリン酸と 3 波長蛍光体の分離が可能になっていること。
 - ・ 100℃ 程度低温化できるプロセス技術を開発する。また新材料に適用する場合の指針を得る。
- (1) ~ (3) で開発された技術をあわせて Tb、Eu の使用量を 45% 以上低減することを目標とする。

最終目標：平成 25 年度

- (1) 蛍光体の Tb、Eu 使用量低減技術の開発
- ・ ランプでの適合性、量産性に問題のない Tb、Eu の使用を 30% 以上低減できる蛍光体の組み合わせを提示する。
 - ・ この蛍光体の量産技術を確立する。
- (2) ランプ部材の開発
- ・ 従来のガラス・蛍光体と組み合わせて 20% 以上高い光束が得られるシリカ保護膜を開発する。
 - ・ 全方位光に対して従来のガラス管より 10% 以上の取り出し効率を有するガラスを開発する。
 - ・ このガラス部材の量産方法について適切な方法を確立する。
- (3) ランプシステムにおける最適化・蛍光体省使用製造技術の開発
- ・ ランプ構成の最適化により Tb、Eu の使用を 5% 低減できる蛍光体の使用量低減技術を開発する。
 - ・ ランプ製造工場内で現在廃棄されている蛍光体が再利用できる技術を開発し、10% 以上の蛍光体の使用量を低減する。
 - ・ ランプ製造プロセスの改善により、蛍光体のロスを 10% 程度改善する。

最終的には細管ランプなどの技術を併用し、(1) ~ (3) で開発された技術をあわせて従来のものより製造時の Tb、Eu の使用量を 80% 以上低減することが可能なランプを提示する。

研究開発項目⑨-1「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石及びイットリウム系複合材料の開発」
(Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究)

1. 研究開発の必要性

我が国の低炭素社会実現に必要な電気自動車等の製品においては焼結永久磁石がキーデバイスであり、高保持力を得るためにレアメタルを使用している。これらレアメタルは一部の外国に供給を依存しているため研究開発項目③でジスプロシウムの使用量低減技術を開発しているところである。しかし昨今の世界的な環境意識の高まりから今後、これら製品の需要増加が見込まれるため、中長期的な視点から抜本的な対策が求められる。

このため、我が国の強みであるナノテク技術や新素材・部材の開発力を生かし、レアメタルに依存しない低炭素社会の実現を可能とする新規永久磁石の研究開発を促進する必要がある。

2. 研究開発の概要

資源枯渇に脅かされない至極ありふれた元素である鉄と窒素を主原料とすることにより脱希少金属化を可能とさせ、現行のNd-Fe-B系磁石の特性を凌駕するポテンシャルを持つ高飽和磁束・高磁気異方性新規磁石材料の探索を行う。鉄-窒素系化合物として窒化鉄系材料と希土類(R)-Fe-Nに着目し、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析と磁気特性評価を通し、窒化鉄の所望相の合成技術指針の獲得とR-Fe-Nのバルク化技術の構築を図る。

(1)「窒化鉄系材料の合成とその基礎特性把握」

これまで蓄積してきた窒化鉄薄膜に関する豊富な知見をもとに、これまで獲得してきたナノ粒子化技術を援用し、所望相である $Fe_{16}N_2$ 相が実現可能な直接合成あるいは間接合成技術の獲得を目指す。

(2)「R-Fe-N系磁石の高性能化に向けた要素技術開発」

R-Fe-N系化合物の優れた磁気特性に着目し、これらを高充填でバルク化して高性能磁石とするための要素技術を開発するため、磁性粉末やバインダ材料などの材料とパルス通電焼結法、低温せん断圧縮法、超高压法などのバルク化技術を検討する。また、非平衡相を作製できる薄膜法や超高压を用いて新たなR-Fe系化合物を探索する。

(3)「新規磁石材料の高特性化に向けた指導原理獲得」

アトムプローブなどの微細構造解析技術および電子顕微鏡観察によるナノ粒子の微構造観察技術を上記(1)項および(2)項で作製した新規磁石材料に適用し、粒子の粒径・形態や焼結状態、結晶配向性、組成分布等の構造情報を得て、新規磁石材料の高特性化に向け、それら構造的知見を合成・プロセス条件にフィードバックする。

(4)「モータの評価・解析」

新規磁石および希土類磁石を用いたモータの特性比較および新規磁石に適したモータ構造に関する検討で得られた知見を実証するため、実際に磁石モータを試作し、試験を行う。まずは先行して希土類磁石を用いたモータの試作・試験を行うことで、シミュレーションから実証試験までを一貫して行える態勢を作る。

3. 達成目標

最終目標：平成22年度

(1) 窒化鉄系材料の開発

- ・出来る限り早期に80%以上の $Fe_{16}N_2$ 相からなる微粒子を作製し、高性能磁石化に資する基本特性を確認する。
- ・磁石化に向けて、より保磁力を高める磁性粉末の開発指針を得る。

(2) R-Fe-N系材料の開発

- ・モータ用磁石としての実用を考え、保磁力20kOe程度を目標とする。

研究開発項目⑨-2「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石及びイットリウム系複合材料の開発」
(超軽量高性能モータ等向けイットリウム系複合材料の開発)

1. 研究開発の必要性

超軽量かつ高性能な次世代モータ、発電機やMRI等の次世代医療診断機器等の実現のためには、高い磁場を発生させることのできるコイル（電磁石）が必要となる。

イットリウムは光学ガラス、赤色蛍光体、自動車の排ガス処理用触媒等に利用されている希少金属である。イットリウムを用いた複合材料は、ジスプロシウムを含有するモータ部材に将来的に代わる可能性があると期待されている。イットリウム系複合材料は、次世代モータ、発電機、医療診断機器等の実現には不可欠な材料であり、この開発を行う必要がある。

2. 研究開発の概要

本プロジェクトは、ジスプロシウムを含有するモータ部材に将来的に代わる可能性のある次世代モータ部材を実現するイットリウム系複合材料の開発を行う。イットリウム系複合材料は高温超電導材料であり、線材形状をしていることから界磁巻線同期回転機への適用が可能である。超電導材料は電気抵抗が零であることから損失なく電流を流すことができる。特に、イットリウム系超電導体（ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ）は約 90 K 以上の臨界温度（ T_c ）を有し、特に磁場中で高い臨界電流（ I_c ）特性を示すことから、電動機等の回転機の磁場中での応用に適した材料である。しかしながら、コンパクトなモータを実現するためには効果的な磁場環境を作り出すことが必要であり、この条件を満たすためには、強力な電磁力に耐え得る機械的な強度と共に接続損失低減のために単長の長い線材が必要となる。そこで、本研究開発では、まず、必要な特性を有した超長尺イットリウム系複合材料を作製するプロセスを開発する。並行して、更に希少金属の利用率の低減が期待できるプロセス開発を行うと共に、イットリウム系複合材料を用いたモータに対する構造最適化のための課題を抽出することを目的とした概念設計、巻線技術及び冷却技術等の要素技術開発を実施する。

(1) 超長尺イットリウム系複合材料における希少金属使用量低減技術開発

本項目では、これまで国内で 500 m 長複合材料を実現できている作製プロセスを選択し、イットリウム系複合材料を用いた電磁石を実現するために必要な I_c を超える高い特性を有した超長尺複合材料を実現するプロセス開発を行う。

(2) イットリウム系複合材料の製造工程における希少金属利用率等の効率向上技術開発

本項目では、研究項目（1）で選択したプロセスに比べて現状では長尺作製実績は十分ではないものの原理的に高い原料収率が見込まれる作製手法において複合材料プロセスの開発を行うことで、イットリウム利用率向上技術の開発を行う。

(3) イットリウム系複合材料を用いた回転機要素技術開発

本項目では超長尺イットリウム系複合材料を用いたモータに対する構造最適化のための課題抽出を目的として、磁場、応力等のシミュレータの開発とこれを用いた構造評価を行なうと共にモータ開発の基軸になる傘型等異形界磁巻線、サーモサイフォン式冷却方式の要素技術の開発を並行して行う。

3. 達成目標

最終目標：平成 22 年度

(1) 300 A/cm 幅 (@ 77 K、自己磁場) の特性を有し、1 km を超える超長尺複合材料作製を見通す。

(具体的目標値)

- ・ 1km 長複合材料を作製し、平均 I_c が 200A/cm 幅以上 (@77 K、自己磁場) であることを実証する。
- ・ 同条件で作製した 10m 長以上の複合材料で I_c が 300A/cm 幅 (@77 K、自己磁場) 以上を実証する。

(2) 超電導層の連続形成プロセスにおいて、原料収率 40% 以上を見通す。

(具体的目標値)

- ・ 全成膜領域に対し、静止成膜により原料収率 40% 以上を実証する。
- ・ 成膜領域の一部を通過する移動成膜により、静止成膜結果から予想される成膜量を実証する。

(3) 大容量回転機（500kW級－1000rpm級）概念設計により、イットリウム系複合材料による大型回転機の優位性を見通す。また、傘型界磁巻線の試作とその熱的、電磁氣的、機械的特性評価およびサーモサイフォン式冷却試験とその冷却特性評価により、500kW級－1000rpm級回転機的设计に資する。

(具体的目標値)

- 磁場－応力－伝熱を連成した回転機評価用シミュレータを開発する。
- 上記シミュレータを用いた総合評価により傘型コイル利用回転機で従来の永久磁石回転機に比べ希少希土類元素使用量が 1/10 となる成立性を示す。
- Ne を用いたサーモサイフォン式冷却装置において高速回転時の回転数と冷却能力の関係を明らかにし、回転機の冷却設計を可能にする。

研究開発項目⑨-3 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発

1. 研究開発の必要性

ハイブリット自動車や電気自動車、情報家電、産業機器等のモータの高能率化においては永久磁石がキーデバイスであり、日本で開発され最強の磁石と言われるネオジム磁石(Nd-Fe-B系磁石)は高保磁力を得るためにジスプロシウム(Dy)を使用しているが、ネオジム(Nd)やDyは一部の外国に供給を依存しており、研究開発項目③でDyの使用量低減技術を開発しているところである。しかし昨今の世界的な環境意識の高まりから今後、これら製品の需要増加が見込まれるため、中長期的な視点から抜本的な対策が求められる。

このため、我が国の強みであるナノテク技術や新素材・部材の開発力を生かし、Nd、Dyに依存しない新規永久磁石の研究開発を促進する必要がある。

これまでにネオジム磁石そのものの代替として研究開発項目⑨-1で窒化鉄系やR-Fe-N系(Rは希土類元素)の磁性材料の研究開発を行ったが、実用化までには至っていない。

従って、ネオジム磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発を行う必要がある。

2. 研究開発の概要

資源枯渇に脅かされない元素を主原料とし、現行のNd-Fe-B系磁石と同等の性能を有する新規磁石の開発を行う。開発にあたっては、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析と磁気特性評価を通し、新たな磁性材料の成型技術の構築を図る。

(1) さらなる磁性材料の探索

Nd-Fe-B系焼結磁石に代わる磁性材料の新たな探索と実用化技術開発に係る磁石化技術の確立を目指し、①新規磁石材料の探索、②複合磁石の組織制御および成型技術の研究開発を実施する。

独自の経験則に基づく磁石材料探索マップの中で有望と思われる、ソフト/ハード複合材料系およびハード/ハード複合材料系を基本構成とする人工格子膜磁石、およびBi-Zn系、Bi-Mn系低融点金属バインダを用いた上記構成のメタルボンド磁石の試作を通して、これらの磁石性能、耐久性等を評価し代替磁石の可能性を見極める。

(2) 磁石化技術の開発

永久磁石をはじめとする磁性材料分野において、①「分散・表面修飾の基礎技術」、②「大量合成技術」、③「バルク化技術」、④「評価・解析」、の4つの研究項目を設定し、窒化鉄ナノ粒子を約10g/バッチで合成可能な技術の構築を目指す。また、特定粒径の窒化鉄ナノ粒子に対する分散・表面修飾プロセスを構築し、バッチ当たりの全試料粒子のうち体積分率で50%の粒子が単分散できた状態を目指す。

3. 達成目標

【目標】 平成24年9月

(1) さらなる磁性材料の探索

① 新規磁石材料の探索：磁石材料探索マップの中で有望と思われる、代替磁石の可能性を見極める。

(2) 磁石化技術の開発

① 「分散・表面修飾の基礎技術」：単分散粒子 50vol%以上

② 「大量合成技術」：約10g/バッチの合成技術確立

③ 「バルク化技術」： ナノ鉄粉末において磁性相充填率 70vol%以上のラボレベル実証

研究開発項目⑩-1 A 「排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発、透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発」
(排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発)

1. 研究開発の必要性

セリウムは、フラットパネルディスプレイやハードディスク向けガラス、デジタルカメラ等のレンズの研磨剤、排ガス浄化用助触媒、紫外線カットガラス、蛍光体向け等の材料として用いられている。世界最大のレアアース供給国である中国からの輸出統計によれば、わが国は世界最大のセリウム消費国である（内需データが不明な中国を除く）。わが国におけるセリウム需要（平成 21 年）では、研磨材向けが約 79%、触媒向けが約 13%、紫外線カットガラス向けが約 8%になっており、その消費量は平成 21 年度現在約 9,300 t（酸化物換算）と推計されている。排ガス浄化向けには、中国やインドをはじめとした世界的な自動車需要の増加、ガソリン車やディーゼル車の排出ガス基準値の強化への対応、白金触媒の材料コスト削減のための助触媒としての使用量増、などにより引き続き使用量が増えることが想定される。セリウムは、この半年で、急激な価格上昇、供給の大幅減に直面しているが、わが国が成長を期待する産業において成長を阻害する要因として懸念され始めている。

本研究開発は、排ガス浄化向けのセリウム使用原単位を 30%以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

本研究開発は、自動車等エンジン排ガス浄化触媒に使用されているセリウム助触媒を対象に、その使用量を 30%以上低減しても、現行触媒と同等レベルの酸素貯蔵能、HC/C 浄化性能および NO 浄化性能を有する高活性、高耐久性触媒の開発を目的とする。

(1) セリウム使用量を低減した微粒子触媒材の開発

微粒子合成技術の開発と、希薄高分散した複合微粒子の組織制御を行い、セリウム量を低減もしくは不触媒材による触媒材の高度化を図る。

(2) セリウム使用量を低減した酸素貯蔵能材の開発

研究項目(1)で開発した微粒子材料をもとに、ガソリン車排気処理に必須となっている酸素貯蔵能(OSC)材への応用を図り、セリウム量低減もしくは不触媒としてもOSC性能を保持しうる新規OSC材を開発する。

(3) ガソリン車排ガス浄化触媒の開発

項目(1)および(2)で得られた成果を統合し、ガソリン車で実用化するための触媒改良と触媒大量調製技術を検討し、その浄化性能評価を実車レベルで行い、実用化可能性を検討する。

3. 達成目標

排ガス浄化向けセリウム使用原単位を30%以上低減する基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

最終目標：平成 23 年度

(1) セリウム低減触媒および不触媒について、基本原理を確立する。

(2) セリウム低減触媒および不触媒について、大量調製技術を確立する。

(3) セリウム使用量を 30%以上低減した、ガソリン車向け排ガス浄化触媒を製作、評価する。

研究開発項目⑩-1B「排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発、透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発」

(排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発)

1. 研究開発の必要性

セリウムは、フラットパネルディスプレイやハードディスク向けガラス、デジタルカメラ等のレンズの研磨剤、排ガス浄化用助触媒、紫外線カットガラス、蛍光体向け等の材料として用いられている。世界最大のレアアース供給国である中国からの輸出統計によれば、わが国は世界最大のセリウム消費国である(内需データが不明な中国を除く)。わが国におけるセリウム需要(平成21年)では、研磨材向けが約79%、触媒向けが約13%、紫外線カットガラス向けが約8%になっており、その消費量は平成21年度現在約9,300t(酸化物換算)と推計されている。排ガス浄化向けには、中国やインドをはじめとした世界的な自動車需要の増加、ガソリン車やディーゼル車の排出ガス基準値の強化への対応、白金触媒の材料コスト削減のための助触媒としての使用量増、などにより引き続き使用量が増えることが想定される。セリウムは、この半年で、急激な価格上昇、供給の大幅減に直面しているが、わが国が成長を期待する産業において成長を阻害する要因として懸念され始めている。

本研究開発は、排ガス浄化向けのセリウム使用原単位を30%以上低減するため、以下の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

以下の研究開発によりセリウム使用量を30%以上削減する技術を確認する。また、触媒の設計指針および実用化指針を確認する。

(1) 材料設計

- ・理論シミュレーションを用いた研究開発支援、セリア高機能化の原理原則の解明に不可欠な、セリアあるいは代替酸化物粒子のキャラクタリゼーションを実施する。
- ・開発材料のキャラクタリゼーション、シンタリング特性、酸素吸放出特性を解析し、理論シミュレーションと開発研究の橋渡しを行う。

(2) セリウム低減のためのシーズ技術開発

- ・各種ナノテク手法によるセリアの高機能化やセリアと他材料の複合化による高性能化、高耐熱性のγ-Al₂O₃の適用等の検討を実施し、その製造方法を確立するとともに、触媒として評価する。
- ・非セリア系新規材料として、フェライト(Fe)系材料、鉄シリカ系材料、あるいはそれらのセリアとの複合ナノ粒子材料、活性金属としてはPt、Pdよりも安価な銀を選択することで希土類を全く使用しない耐熱性燃焼触媒、種々の新規ペロブスカイト系酸化物の開発を行う。
- ・セリアと担体間の相互作用が変化しセリアのポテンシャルをより大きく引き出すための超臨界ドライ担持法およびマイクロ波固液・超音波法を利用したプロセッシング技術の開発を行う。
- ・実排ガス・実機による性能評価を経て、実用性を評価する。さらに開発された新材料のコスト評価を行い、実用性に見合った大量生産技術を確立する。

(3) 実用触媒の観点に基づく評価指針と実用化の検討

- ・本研究開発で開発された新規セリア系あるいは非セリア系材料を触媒化し、モデルガスによる性能評価により現行量産材との性能比較や特性を把握する。
- ・実用触媒を使用する立場から材料開発の方向性を示す。本研究開発目標をクリアした開発材料に関しては、エンジン単体ベンチでの実排ガス試験により、実用化の観点から評価を実施する。

3. 達成目標

排ガス浄化向けセリウム使用原単位を30%以上低減する基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

最終目標：平成23年度

- (1) 触媒の設計指針および実用化指針を確立する。
- (2) 触媒の量産化技術を確立する。
- (3) セリウム使用量を 30%以上低減した、ガソリン車向け排ガス浄化触媒を製作、評価する。

研究開発項目⑩-2「排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発、透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発」

(透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発／グラフェンの高品質大量合成と応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発)

1. 研究開発の必要性

インジウムは、液晶テレビやパソコンモニター等のフラットパネルディスプレイのガラス上の透明導電用にITO（インジウムと錫の複合酸化物）として使用されている。この用途向けの消費量は国内消費量の約90%を占めているが、その他にも高効率の太陽電池として注目されているCIGS系太陽電池や、化合物半導体、蛍光体向けなどに使われている。ここ数年、鉱山開発や、フラットパネルディスプレイ製造工程からのリサイクル化も進んでいるが、引き続き需要の拡大が見込まれている。

このような中、インジウムの使用量低減技術の開発、ZnOによる代替材料開発を本プロジェクトでは平成19年度より行っているが、インジウムの供給不安定による影響がなく、さらに新たな機能を備えた代替材料の開発も進められ成果が発表され始めている。グラフェン等のナノ炭素材料を用いた透明導電フィルムの開発は、炭素というありふれた材料を用いることから材料コスト低減や、フレキシブル用途への展開も可能であることから、我が国の産業競争力の向上が期待できる。一方でグラフェンをITO代替材料として実用化するためには、諸外国との開発競争に勝ち、透明電極開発の優位性を確保することが重要な課題となっている。

本研究開発は、ITO代替を実現するため、グラフェンによる透明電極の基盤技術及び製造技術を開発する。

2. 研究開発の概要

本研究開発では、プラズマCVDによる低温大面積グラフェン合成技術を基に、新しいナノ炭素材料であるグラフェンの高品質化、大量合成法及び透明電極利用の技術を開発することにより、透明電極材料としての優れた特性を引き出し、ITO代替材料実現に資するグラフェンの開発を目的とする。

(1) 高品質グラフェン合成技術の開発

- ・グラフェンの高品質化に適したプラズマ源およびプラズマCVDの条件探索を通してプラズマCVDの最適化を図り、グラフェンの生成メカニズムを解明する。また生成基板である銅箔の平坦性など表面特性を向上させ、グラフェンの高品質化を図る。
- ・ポリイミド樹脂フィルム基板に積層した銅の薄膜を基材としたグラフェンの合成技術を開発し、銅の使用量低減によるグラフェン合成の低コスト化を図る。高品質グラファイトフィルムや金属基板上の多層グラフェン膜を用いて、層間剥離法やエッチングレス製造方法による高品質グラフェン膜や安価な製造法の検討を行う。
- ・剥離・転写する際に酸化したグラフェンを水素等の還元性気体のプラズマにより低温還元・高純度化する技術を開発する。CVD合成中のドーピング、あるいは合成後の吸着ドーピングの他、カーボンナノチューブなどとの複合化によるグラフェンの高品質化を図る。気体や固体の炭素源を出発原料としてプラズマや熱処理法を駆使してグラフェンを合成し、それらを改質処理して多層グラフェン膜の高品質化を行う。

(2) ロール to ロール大量合成技術の開発

基板表面の前処理・グラフェン合成・グラフェン合成後の後処理を連続して行うプロセスを開発する。また各プロセスの最適化を行い、ロール to ロール生成法に適用することで、グラフェンの大量合成技術を開発する。

(3) 透明フィルムの製造技術の開発

グラフェンのパターン形成技術としてレーザーエッチング法を開発する。また銅箔上に形成させたグラフェンをレーザーにより、透明基板上に剥離・転写する方法の開発と、転写と同時にパターンニングも行う技術を開発する。ITOで一般的で低コストなケミカルエッチング法を化学的に安定なグラフェンに適用可能なパターンニング技術を探索する。また、銅箔に合成したグラフェンのPETフィルムへのロール to ロール転写法を開発する。

(4) 透明導電性フィルムの性能評価

透明導電性フィルム適用先であるタッチパネルに要求される電氣的、光学的特性、および耐環境性等信頼性の評価を行う。さらにグラフェン透明電極を利用したタッチパネルを試作する。

3. 達成目標

グラフェンによる透明電極の実用化に向け、基盤技術及び製造技術を開発することを目標とする。

最終目標：平成23年度

- (1) 幅 600mm、連続合成速度 0.6m/分以上が可能なロール to ロール装置を開発する。
- (2) 線幅 0.3mm のグラフェンパターンニング技術を開発する。
- (3) 300mm 幅のロール to ロールフィルム工程で、長さ 5m 以上の連続転写法を開発する。
- (4) 下記の特性を持つグラフェン透明導電膜をロール to ロールで製造する技術を開発する。

シート抵抗： 500Ω/sq 以下

透過率： 87%以上

b* : 4 以下

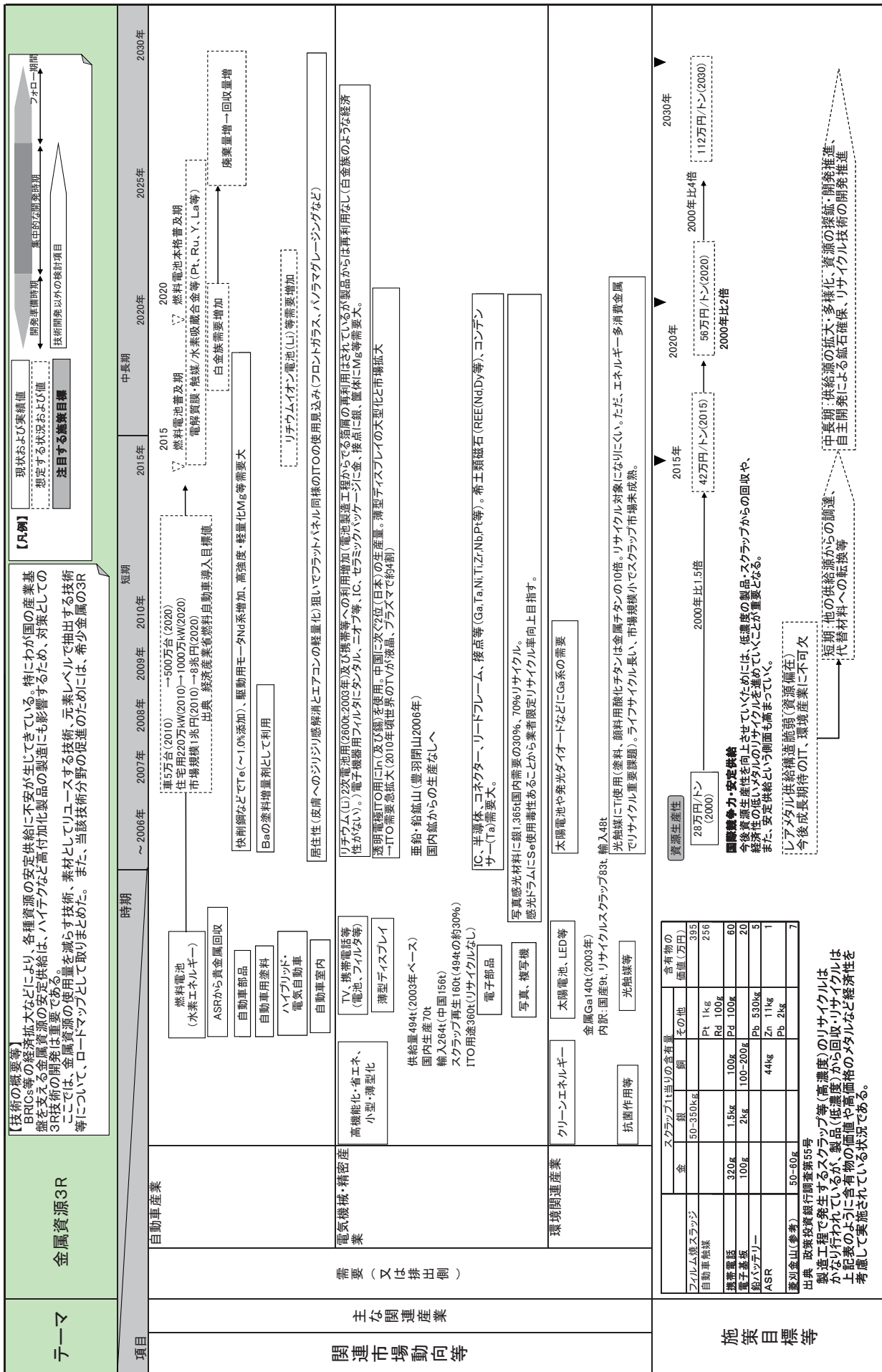
ヘイズ： 3%以下

シート抵抗リニアリティ： ±1.5%以下

3R分野の詳細技術ロードマップ(9/15)
金属資源3R (D)

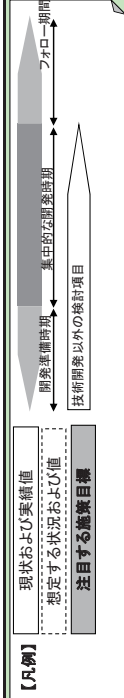
テーマ	金属資源3R				
	【技術の概要等】 BRICs等の経済拡大などにより、各種資源の安定供給に不安が生じてきている。特にわが国の産業基盤を支える金属資源の安定供給は、ハイテクなど高付加製品の製造にも影響するため、対策としての3R技術の開発は重要である。 ここでは、金属資源の使用量を減らす技術、素材としてリユースする技術、元素レベルで抽出する技術等について、ロードマップとして取りまとめた。また、当該技術分野の促進のために、希少金属の3R	【凡例】 現状および実績値 想定する状況および値 注目する施策目標 開発推進時期 技術開発以外の検討項目 フォロー期間			
項目	短期 2006年～2010年	中期 2015年	長期 2020年	2030年	
概要	目標	資源生産性を2015年に42万円/トン(循環基本計画目標)とする。 車鉛鉱山等の閉山で益々海外依存度が高まる。 ITの進展や技術の進歩、環境低負荷技術、高品質素材の要求など(小型、省エネ、高機能)で希少金属の利用が広範囲に広がる(国内) 一部資源の価格高騰(供給量不足) 中国をはじめとするBRICs諸国の台頭により、一部資源の需要量(構造物用)が増加し貴重な金属資源の確保が厳しくなる。 再生利用の徹底を図るための分離回収技術開発	資源生産性を2020年に56万円/トン(2000年比2倍)、2030年に112万円/トン(2000年比4倍)とする。 リサイクル製品等から精製されたレアメタルの供給量が増える。 中国をはじめとするBRICs諸国のGDPが一部先進国を超える。 BRICs諸国のハイテク製品の生産増に伴いハイテク用レアメタル需要増。 レアメタルの需要が増えるが、使用量の少量化で需給の更なる逼迫は回避。 貴重な金属資源の使用量を削減する代替品開発 持続的な資源利用を図るための高効率化、不純物混入防止技術開発		
	当該技術分野のシナリオ	GDP BRICs < G7 (2004)	日本のGDPを超える中国 (2017) インド (2028)	GDP BRICs > G7 (2035)	
関連市場動向等	レアメタル生産国/需要国の経済状況の変化等	レアメタル31鉱種(希土類17鉱種を1鉱種扱い)の内、特に産業の振興を支えるIT関連・環境関連産業等に必須な金属	出典 第一生命経済研究所2005.5.27 No.A-18		
	非鉄産業 (又は供給処理側)	国内鉱山減少(輸入鉱増加) リサイクル製錬への期待 現状 鉱石副産物および金属資源リサイクル等を通してレアメタル供給 出典 日本鉱業協会資源化部会 特殊調整にレアメタルを添加剤として利用 (Cr, Ni, Mo, V, Co, Mn等)	出典 「総合資源エネルギー調査会 鉱業分科会 レアメタル対策部会報告書」 (平成16年7月28日)	再生資源化量 国内生産比 銅 130千t 9.2% 鉛 103千t 14.6% 亜鉛 95千t 13.8% 錳 90千t 23.8% ニッケル 240千t 33.3% その他 7.0% 総計 342千t	
鉄鋼産業	高機能化	環境対応・高機能化・省エネ化 生産量 Pt Pd Rh (2004年(t/y)) 南ア 159 81 19 ロシア 27 116 3 米国 11 29 1 回収 25 21 5 その他 8 9 1 合計 230 256 28 リサイクル 11% 8% 17% 鉄鋼 125 115 26 出典 JM Pt Report	2015年 自動車リサイクル率(95%目標) 輸出中古車分を含めた廃車触媒からの白金族の回収率 向上のためのシステムを構築		
自動車産業	需要(又は排出側)	国内のインフラ持続 国の政策支援等 十分なレアメタルの供給可能	輸出中古車の触媒対策等検討が必要 △ 輸出中古車の触媒回収率が回収されない		

3R分野の詳細技術ロードマップ (10/15) 金属資源3R (D)



3R分野の詳細技術ロードマップ (11/15)
金属資源3R (D)

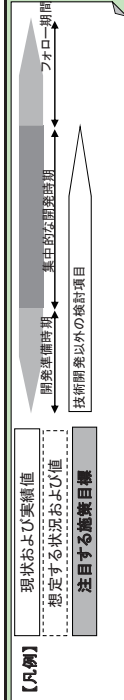
【技術の概要等】
BRICS等の経済拡大などにより、各種資源の安定供給に不安が生じている。特にわが国の産業基盤を支える金属資源の安定供給は、ハイテクなど高付加価値品の製造にも影響するため、対策としての3R技術の開発は重要である。
ここでは、金属資源の使用量を減らす技術、素材としてリユースする技術、元素レベルで抽出する技術等について、ロードマップとして取りまとめた。また、当該技術分野の促進のためには、希少金属の3R



項目	短期		中期		長期	
	2006年	2007年	2008年	2009年	2010年	2015年
大分類	金属資源3R					
小分類	不純物管理技術					
対象物等	鉄鋼					
技術No.	3R3001					
詳細技術	スクラップ鉄と非鉄金属を低コストで分離・回収する技術					
時期	2006年	2007年	2008年	2009年	2010年	2015年
技術No.	3R3002					
対象物等	アルミニウム					
詳細技術	アルミニウムの不純物無害化技術					
技術No.	3R3003					
対象物等	超微細粒鋼					
詳細技術	超微細粒鋼製技術 (合金添加元素を含め単純成分)					
技術No.	3R3004					
対象物等	溶融飛灰					
詳細技術	溶融飛灰中の銅、亜鉛、鉛、カドミウム等の回収技術					
技術No.	3R3005					
対象物等	フィルム焼スラッジ					
詳細技術	銀回収等					
技術No.	3R3006					
対象物等	廃自動車					
詳細技術	廃自動車からの電子機器分離回収システム					
技術No.	3R3007					
対象物等	自動車触媒から白金族回収					
詳細技術	回収率50% (中古車輸出分未回収) 廃自動車触媒から白金族回収					
技術No.	3R3008					
対象物等	自動車ASR					
詳細技術	ASRなど金属品位の低いものからの金属回収					
技術No.	3R3009					
対象物等	電池、永久磁石					
詳細技術	レアアースの回収					
技術No.	3R3010					
対象物等	PC、携帯等					
詳細技術	貴金属(金銀)の回収およびレアメタル回収(LI等)					
技術No.	3R3011					
対象物等	ブラウン管TV					
詳細技術	ブラウン管のリサイクル					
大分類	金属資源 (レアメタルなど)					
小分類	分離・回収技術					
対象物等	自動車					
技術No.	3R3001					
詳細技術	スクラップ鉄と非鉄金属を低コストで分離・回収する技術					
時期	2006年	2007年	2008年	2009年	2010年	2015年
技術No.	3R3002					
対象物等	AIの不純物					
詳細技術	AI(独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構「鉱物資源マテリアル・フロー2004」					
技術No.	3R3003					
対象物等	レアメタル使用抑制					
詳細技術	環境調和型超微細粒鋼製技術					
技術No.	3R3004					
対象物等	飛灰中金属回収					
詳細技術	既存の回収技術は昇華ロス大 湿式還元法十電気分離で高回収効率等(新技術開発)					
技術No.	3R3006					
対象物等	廃自動車					
詳細技術	廃自動車からの電子機器分離回収システム開発					
技術No.	3R3007					
対象物等	自動車触媒から白金族回収					
詳細技術	輸出中古車の触媒回収を進める制度必要 ただし、輸出中古車の性能はそれぞれの国情に合わせて代替触媒を充填することがIPL紛争回避のため必要					
技術No.	3R3008					
対象物等	自動車ASR					
詳細技術	ASRからの金属回収技術 出典 政策投資銀行 「使用済み自動車リサイクルを巡る展望と課題」					
技術No.	3R3009					
対象物等	電池、永久磁石					
詳細技術	製造工程のスクラップのリサイクル率95%以上。それ以外はリサイクルされてない。 国内リサイクルコスト高>バーン・ジン材 中国で処理されている 低コストリサイクル技術					
技術No.	3R3010					
対象物等	PC、携帯等					
詳細技術	携帯電話自主回収(期未達) 金(リサイクル率40%)、銀(30%) 貴金属回収					
技術No.	3R3011					
対象物等	ブラウン管TV					
詳細技術	ファンネルガラスからのPb効率的回収					
大分類	金属資源3R (D)					
小分類	分離・回収技術					
対象物等	自動車					
技術No.	3R3001					
詳細技術	スクラップ鉄と非鉄金属を低コストで分離・回収する技術					
時期	2006年	2007年	2008年	2009年	2010年	2015年
技術No.	3R3002					
対象物等	AIの不純物					
詳細技術	AI(独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構「鉱物資源マテリアル・フロー2004」					
技術No.	3R3003					
対象物等	レアメタル使用抑制					
詳細技術	環境調和型超微細粒鋼製技術					
技術No.	3R3004					
対象物等	飛灰中金属回収					
詳細技術	既存の回収技術は昇華ロス大 湿式還元法十電気分離で高回収効率等(新技術開発)					
技術No.	3R3006					
対象物等	廃自動車					
詳細技術	廃自動車からの電子機器分離回収システム開発					
技術No.	3R3007					
対象物等	自動車触媒から白金族回収					
詳細技術	輸出中古車の触媒回収を進める制度必要 ただし、輸出中古車の性能はそれぞれの国情に合わせて代替触媒を充填することがIPL紛争回避のため必要					
技術No.	3R3008					
対象物等	自動車ASR					
詳細技術	ASRからの金属回収技術 出典 政策投資銀行 「使用済み自動車リサイクルを巡る展望と課題」					
技術No.	3R3009					
対象物等	電池、永久磁石					
詳細技術	製造工程のスクラップのリサイクル率95%以上。それ以外はリサイクルされてない。 国内リサイクルコスト高>バーン・ジン材 中国で処理されている 低コストリサイクル技術					
技術No.	3R3010					
対象物等	PC、携帯等					
詳細技術	携帯電話自主回収(期未達) 金(リサイクル率40%)、銀(30%) 貴金属回収					
技術No.	3R3011					
対象物等	ブラウン管TV					
詳細技術	ファンネルガラスからのPb効率的回収					

3R分野の詳細技術ロードマップ(12/15)
金属資源3R (D)

【技術の概要等】
BRICs等の経済拡大などにより、各種資源の安定供給に不安が生じてきている。特にわが国の産業基盤を支える金属資源の安定供給は、ハイテクなど高付加製品の製造にも影響するため、対策としての3R技術の開発は重要である。
ここでは、金属資源の使用量を減らす技術、素材としてリユースする技術、元素レベルで抽出する技術等について、ロードマップとして取りまとめた。また、当該技術分野の促進のための、希少金属の3R等について、ロードマップとして取りまとめた。



項目	短期		中長期		2030年	
	2006年 ~2007年	2008年 2009年 2010年	2015年	2020年		
金属資源3R	【技術の概要等】 BRICs等の経済拡大などにより、各種資源の安定供給に不安が生じてきている。特にわが国の産業基盤を支える金属資源の安定供給は、ハイテクなど高付加製品の製造にも影響するため、対策としての3R技術の開発は重要である。 ここでは、金属資源の使用量を減らす技術、素材としてリユースする技術、元素レベルで抽出する技術等について、ロードマップとして取りまとめた。また、当該技術分野の促進のための、希少金属の3R等について、ロードマップとして取りまとめた。	薄型ディスプレイITO	パネルから透明膜ITO分離およびITOスクラップからインジウムリサイクル	3R3012	ハネルからの回収はされていない(経済的にリサイクル採算合わない)	2020年
		廃触媒(硫酸製造用等)からのインジウムの回収	廃触媒から低コスト、回収率向上技術(リサイクル寿命が10年~20年と長いのが特徴)	3R3013	低濃度から高濃度への濃縮工程、パネルからのインジウム回収技術(低コスト化) 出典(独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構「鉱物資源マテリアルフロー-2004」	2025年
		超硬工具からのタングステン(W)、コバルト(Co)、モリブデン(Mo)等回収	超硬工具からのタングステン(W)、コバルト(Co)、モリブデン(Mo)等回収	3R3014	国内ナジウム原料のソースであり重要(2003年:798t) 「鉱物資源マテリアルフロー-2004」	2030年
		埋立物	高度前処理技術(メタル等の分離+均質混合技術)	3R3015	超硬工具から回収技術の確立 低コスト回収技術の確立	
		自動車部品等に含まれる添加剤レアメタル	部品のリユース、レアメタル回収	3R3016	中古車500万台(輸出約100万台):部品としてリユース20~80%、 素材としてリサイクル50~55%合計して再資源化率75~89%、 出典 政策投資銀行「使用済み自動車リサイクルを巡る展望と課題」 自動車部品のリユース(部品の海外輸出の抑制等)	
		携帯、ノートPC等の筐体、自動車部品等に使用されるMg	使用済み製品からのマグネシウム(Mg)の回収方法及びのリサイクル	3R3017	ハイブリット車、Liイオン電池からのレアメタル回収 製造工程の屑はリサイクルされている ダイキャスト製品(自動車部品、射出成型品(筐体)回収方法及びリサイクル技術開発)	
		複合素材等	ポート、プリント基板、建設廃材のFRP(ガラス長、短繊維)に含まれるホウ素のリサイクル	3R3018	出典(独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構「鉱物資源マテリアルフロー-2004」 使用済みFRP廃棄物:他材料との複合体、不純物汚染再資源化困難 易分解、単成分化で含有元素ホウ素リサイクル 分離が困難なものについて、適切なマテリアルフローを実現するための社会システムの構築	
		リデュース技術	各種レアメタルの使用量削減技術(W, In, Nd, Dy等)	3R3019	製造工程での各種レアメタル使用量削減技術(W, In, Nd, Dy等)	
		代替素材開発	燃料電池の電解質膜、触媒等	3R3020	白金系に変わる触媒等の開発	
		その他	薄型ディスプレイや自動車室内のITO	3R3021	インジウム代替物質でITO製造する技術(酸化亜鉛等)	
	超硬工具、電子機器、自動車用等モーター類	3R3022	超硬工具のW、磁石用Dyの代替材料開発			
	共通基盤技術	3R3023	識別技術			
	データ収集	3R3024	破砕・粉末化技術			
		3R3025	統計データの収集等			
			構成金属の簡易識別技術			
			粉末冶金製品の破砕・粉末化技術			
			レアメタル等のマテリアルフローおよびリサイクル統計データ等整備			
			マテリアルフロー-動定の規格化			

金属資源(レアメタルなど)

研究テーマ名 希少金属代替材料開発プロジェクト

研究目的

※平成19、21年度に開始した希少金属の使用量低減技術・代替技術開発を発展的に展開するものであり、「明日の安心と成長のための緊急経済対策(平成21年度補正予算(第2号))」に伴って追加公募予定の項目のみ記載。

背景、目的、必要性

背景: ディスプロシウム(Dy)等の希少金属については、これからの成長分野である次世代モータ、MRI等次世代医療診断機器等の新たな産業分野の拡大により需要が増大する見込みである。

目的、必要性: 特定産出国への依存度が高い希少金属は、市場メカニズムが必ずしもうまく機能しない可能性を有し、その供給リスクは経済成長の制約要因となる。そこで、本研究開発は非鉄金属資源の安定供給確保に向けた戦略の一部として代替/使用量低減を目指すものである。

研究内容

研究開発課題 「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石及びイットリウム系複合材料の開発」

本研究テーマは希少金属安定供給確保に将来的に資するものとして、Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究、およびディスプロシウムを含有するモータ部材に将来的に代わる可能性のある次世代モータを実現するイットリウム系複合材料の開発を行う。

- ①Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究
- ②超軽量高性能モータ等向けイットリウム系複合材料の開発

キーテクノロジー、ブレークスルーのポイント、オリジナリティ

- 結晶粒界・界面・薄膜性状の観察及び制御による機能発現メカニズムの解明と構造最適化技術開発
- 新たな材料や原料特性に適合した製造プロセスの開発
- 第一原理計算を初めとする数値計算による材料の最適設計開発技術
- 超長尺複合材料を実現するためのプロセス安定化技術及び均一化技術

目標値とその条件および設定理由

- 設定理由: 本研究テーマは希少金属安定供給確保に資するものとして、緊急経済対策(平成21年度補正予算(第2号))の一環で実施するため、詳細な目標については採択者が決定した後、NEDO、テマリーダー及び採択者との間で協議の上、実施期間において実現可能な目標を定めるものとする。
- 目標値 : 1年間で達成可能な目標を別途設定

技術戦略マップ上の位置付け

- ナノテクノロジー分野技術マップ(高度材料界面制御・高次組織制御)
 - 共通基盤 ⇒ 希少金属への依存度低減 ⇒ 高効率モータ
- 3R分野の技術マップ
 - 金属資源3R ⇒ 代替素材技術等 に位置付けられている。

プロジェクトの規模

- 事業費総額 ①約10億円、②約30億円
- 研究開発期間 ①、②ともに約1年(平成21～22年度)

その他関連図表

キーテクノロジーと製品化のイメージ

① Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の開発

電気自動車等に用いられるモータ内の磁石としてNd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究を行う。

- (1)新規磁石材料の基礎特性把握
- (2)新規磁石の高度化および最適化技術の開発 等

(上記は例示であり、公募により優れた提案があった場合は、(1)、(2)以外にも実施するものとする。)



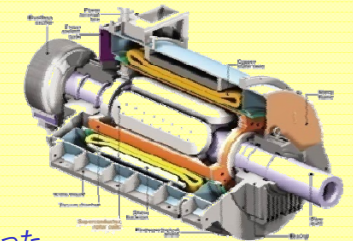
(注)新規永久磁石向け

② イットリウム系複合材料の開発

ディスプロシウムを含有するモータ部材に将来的に代わる可能性のある次世代モータを実現するイットリウム系複合材料の開発を行う。

- (1)イットリウム系複合材料の製造工程におけるイットリウム利用率等の効率向上
- (2)線材構造の最適化等による高度化で線材特性を向上させ、超長尺化に向けた要求性能に対する技術開発 等

(上記は例示であり、公募により優れた提案があった場合は、(1)、(2)以外にも実施するものとする。)



(注)高性能モータ向け

「希少金属代替材料開発プロジェクト 基本計画（案）」に対するパブリックコメント募集の結果について

平成 22 年 1 月 25 日

NEDO

ナノテクノロジー・材料技術開発部

新エネルギー技術開発部

NEDO POST 3 において標記基本計画（案）に対するパブリックコメントの募集を行いました結果をご報告いたします。
みなさまからのご協力を頂き、ありがとうございました。

1. パブリックコメント募集期間

平成 21 年 12 月 24 日～平成 22 年 1 月 4 日

2. パブリックコメント投稿数＜有効のもの＞

計 2 件

3. パブリックコメントの内容とそれに対する考え方

ご意見の概要	ご意見に対する考え方	基本計画への反映
全体について		
[意見 1]（1 件） ・ 将来の日本の資源戦略及び技術戦略上必要な技術開発であり、開発内容は決して容易ではないことから NEDO がサポートする事業として適切であると考え。適切な目標設定と効率的な手法、体制での推進が肝要であろう。特に要素技術開発である内容に関しては、何らかの方法で実用化につなげる技術に関する開発も同時に実施することが有効かと考える。	[考え方と対応] ・ 御指摘頂いた点を踏まえて、プロジェクトを推進してまいります。	[反映の有無と反映内容] 特になし。

ご意見の概要	ご意見に対する考え方	基本計画への反映
全体について		
<p>[意見 2] (1件)</p> <p>・本プロジェクト（イットリウム系複合材料の開発）は、永久磁石を電磁石で代替し、永久磁石の構成材料であるレアメタルの削減を図るものであり、重要且つタイムリーなプロジェクトと理解する。また、超電導電磁石は、永久磁石に比して、高磁界マグネット及び大型回転機に有利（高効率／軽量コンパクト）であり、今後の用途の棲み分けをロードマップ等で明確にすることにより、新規超電導線材産業界の創出と超電導電磁石の応用先の展開が期待できる。</p> <p>今回のプロジェクトは平成21年度補正予算で1年の計画であり、直流電磁石応用に重要な超長尺線材作製技術開発とともにマグネット化要素技術の開発までが恐らく精一杯であると推察する。今回のプロジェクト終了後においても、回転機（風力発電機、産業用モータ等）、直流高磁場マグネットの開発に関して、国が支援し、2020年、2050年のCO₂削減目標達成に大きく貢献出来る新規プロジェクトとしてNEDOがinitiativeを取り、強力に推進することを期待する。</p>	<p>[考え方と対応]</p> <p>・御指摘頂いた点を踏まえて、プロジェクトを推進してまいります。新規プロジェクトにつきましては、本プロジェクトの成果等を確認しつつ今後検討させていただきます。</p>	<p>[反映の有無と反映内容]</p> <p>特になし。</p>

以上

研究テーマ名 希少金属代替材料開発プロジェクト

研究目的

※平成19、21年度に開始した希少金属の使用量低減技術・代替技術開発を発展的に展開するものであり、「円高・デフレ対策のための緊急総合経済対策（平成22年度補正予算（第1号）」に伴って追加公募予定の項目のみ記載。

背景、目的、必要性

背景: 希少金属は、自動車、情報家電、産業機器、省エネ型照明等の材料として使われており、わが国の成長を支える製品にとって必要不可欠であり、新たな産業分野の拡大により需要が増大する見込みである。しかしながら、特定産出国に依存する鉱種が多く、産出国の政策等により供給不安の懸念が出てきている。

目的、必要性: 本研究開発は、既存の事業として取り組んでいる鉱種（平成19年度～：In/Dy/W、平成21年度～：Pt族/Ce/Tb・Eu）について、研究開発項目を追加し、使用量低減技術、代替材料開発のさらなる加速を目指すものである。

研究開発課題 「排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発、透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発」

本研究テーマは希少金属安定供給確保に将来的に資するものとして、世界的な自動車需要の増加、排ガス規制強化、白金触媒の使用量低減に必要なセリウム、液晶テレビ等に透明導電膜として用いられるインジウムを代替するグラフェンについて、基盤技術及び製造技術の開発を行う。

- ①排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発
- ②透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発

キーテクノロジー、ブレークスルーのポイント、オリジナリティ

- 第一原理計算を初めとする理論的解析による材料の最適設計開発技術。
- 超微粒子・界面・薄膜性状の観察及び制御による、機能発現や反応メカニズムの解明と構造最適化技術の開発。
- 機能性ナノ材料の製造手法の開発。
- 新たな材料や原料特性に適合した製造プロセスの開発。
等

目標値とその条件および設定理由

- 設定理由：本研究テーマは希少金属安定供給に資するものとして、「緊急総合経済対策（平成22年度補正予算（第1号）」の一環で実施するため、詳細な目標については、採択者が決定した後、NEDO、テーマリーダー及び採択者との間で協議の上、実施期間において実現可能な目標を定めるものとする。
- 目標値：約1年間で達成可能な目標を別途設定

技術戦略マップ上の位置付け

- ナノテクノロジー分野技術マップ（高度材料界面制御・高次組織制御）

共通基盤 ⇒ 貴金属成分の低減・新材料、新塗布技術 ⇒ 自動車触媒

- 3R分野の技術マップ

金属資源3R ⇒ 代替素材技術等 に位置付けられている。

プロジェクトの規模

事業費総額 約2.5億円
研究開発期間 約1年（平成22～23年度）

その他関連図表

キーテクノロジーと製品化のイメージ

①排ガス浄化向けセリウム(Ce)

自動車の排ガス浄化用触媒に用いられるセリウムの使用量低減技術、代替材料の開発を行う。

- (1) 排ガス浄化に対するセリウムの作用原理の獲得
- (2) セリウムの使用量を低減・代替する材料の開発
- (3) セリウムの使用を低減した触媒付きフィルターの開発
- (4) 触媒付きフィルター製造時のセリウムの省使用技術の開発
- (5) セリウム回収技術の開発



(注)自動車触媒向け

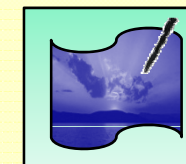
等

(上記は例示であり、公募により優れた提案があった場合は、(1)～(5)以外にも実施するものとする。)

②透明電極向けグラフェン(タッチパネル、表示素子等)

インジウムを用いたITOで形成する透明導電膜を将来的に置き換える可能性のあるグラフェンの開発を行う。

- (1) 使用製品の特性を満足するグラフェンの開発
- (2) 大量合成技術の開発
- (3) 透明フィルムの製造技術の開発



(注)透明電極向け

(上記は例示であり、公募により優れた提案があった場合は、(1)～(3)以外にも実施するものとする。)

事前評価書（案）

	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 30%; text-align: center;">作成日</td> <td style="text-align: center;">平成22年 12月 6日</td> </tr> </table>	作成日	平成22年 12月 6日
作成日	平成22年 12月 6日		
1. 事業名称 (コード番号)	希少金属代替材料開発プロジェクト (P08023)		
2. 推進部署名	電子・材料・ナノテクノロジー部		
3. 事業概要	<p>(1) 概要</p> <p>1) 背景 希少金属は、自動車、情報家電、産業機器、省エネ型照明等の材料として使われており、わが国の成長を支える製品にとって必要不可欠であり、新たな産業分野の拡大により需要が増大する見込みである。しかしながら、特定産出国に依存する鉱種が多く、産出国の政策により供給不安の懸念が出てきている。</p> <p>2) 目的 本研究開発は、既存の事業として取り組んでいる鉱種（平成19年度～：In/Dy/W、平成21年度～：Pt族/Ce/Tb・Eu）について、研究開発項目を追加し、使用量低減技術、代替材料開発のさらなる加速を目指すものである。</p> <p>3) 研究開発概要 本研究開発は、希少金属安定供給確保に将来的に資するものとして、世界的な自動車需要の増加の中、排ガス規制強化対策や白金触媒の使用量低減のために必要となるセリウム、液晶テレビ等に透明導電膜として用いられるインジウムを代替するグラフェンについて、基盤技術及び製造技術の開発を行う。</p> <p>①排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発 ②透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発</p> <p>(2) 事業規模：総事業費 25億円（平成22年度事業費 12.4億円） (3) 事業期間：平成22年度～23年度（約1年間）</p>		
4. 評価の検討状況 ^{***}	(^{***} 平成22年度に公募を予定している研究開発課題に関する事項のみ記載。)		
(1) 事業の位置付け・必要性	<p>1) 位置付け</p> <ul style="list-style-type: none"> ・本事業は第3期科学技術基本計画の中で以下のとおり位置付けられる。 <ul style="list-style-type: none"> 【ナノテク・材料分野の戦略重点科学技術】 <ul style="list-style-type: none"> ↳資源問題解決の決定打となる希少資源・不足資源代替材料革新技術 ・本事業は技術戦略マップ上で以下のとおり位置付けられる。 <ul style="list-style-type: none"> 【ナノテクノロジー分野技術マップ】（高度材料界面制御・高次組織制御） <ul style="list-style-type: none"> 共通基盤 ⇒ 貴金属成分の低減・新材料、新塗布技術 ⇒ 自動車触媒 【3R分野の技術マップ】 <ul style="list-style-type: none"> 金属資源 3R ⇒ 代替技術等 <p>2) 必要性</p> <p>希少金属は、これからの成長分野である自動車、情報家電等の新たな産業分野の拡大や規制強化等により需要が増大する見込みである。希少金属の使用量低減・代替材料開発に対する民間の技術開発投資は、成熟産業であり市場規模が大きい産業としてはあまり期待できない。希少金属は出口である製品分野への影響が大きく、使用量低減・代替技術を支援することは我が国としての資源リスク回避の観点から極めて重要である。</p>		

これらの鉱種の中には特定産出国への依存度が高く、市場メカニズムが必ずしもうまく機能しないものがでてきており、その供給リスクは経済成長の制約要因となる。平成22年度にはこの供給リスクが現実のものとなり、価格の高騰や必要な数量の確保が懸念される鉱種が出てきている。この中でセリウムは、平成21年度より一番需要の多い精密研磨向け開発の取り組みを開始しているが、次に需要の多い排ガス浄化触媒向け開発については未対応である。排ガス浄化触媒向けセリウムは今後の自動車産業の成長維持・向上には必要な材料であり、供給のリスクを低減するために代替材料の開発、使用量低減技術の開発は必要である。また、インジウムは、平成19年度より透明電極向けとしての開発を開始しており、使用量低減技術の開発や無機材料である酸化亜鉛による代替技術の開発を行っている。透明電極については、有機材料であるナノカーボン材料を用いた新たな機能を備えた代替材料開発が進んでおりグラフェンはその有力な候補になっている。グラフェンは、炭素というありふれた材料を用いており、その特性から材料コストの低減やフレキシブル用途への展開も可能であると考えられ我が国の産業競争力の向上が期待できる。諸外国ではグラフェンの実用化研究が進んでおり、透明電極開発の優位性を確保することが重要な課題となっている。以上より、排ガス浄化触媒向けセリウムの開発、透明電極向けグラフェンの開発は、国・NEDOが実施する必要がある。

(2) 研究開発目標の妥当性

<目標>

- 1) 設定理由 : 希少金属各元素のリスク調査、需給動向予測、研究開発のシーズ、産業政策、等を基に、鉱種の選定と使用量低減目標値とした。
- 2) 要件 : 機能、製造コストは現状と同等とする。
- 3) 目標値 : 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見込まれ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。
透明電極向けインジウム (In) : 現状から 50%以上低減
排ガス浄化向けセリウム (Ce) : 現状から 30%以上低減

<妥当性>

「排ガス浄化向けセリウムの使用量低減技術開発及び代替材料開発」、「透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発」を進めることは、それぞれ、自動車産業、情報家電産業、にとって必要不可欠なものであり、研究開発の目標もリスク調査から出てきた需給予測からの削減率となっており妥当と判断する。なお、これらの目標については、今後とも委員会ならびに有識者ヒアリング等で聴取した意見を適切に反映させる。

(3) 研究開発マネジメント

1) 公募要領

本プロジェクトは平成 23 年度末には所定の削減目標値を達成したサンプル試作が可能な研究開発を推進する事が目的である。開発スピード重視の観点から、課題設定型の提案公募方式とする。

2) 研究開発体制

研究開発テーマごとに、それら実施者間において共同研究契約等を締結する研究体制を構築する。各研究体制の構築にあたっては、企業と大学等との産学連携研究体制および川上と川下の垂直連携体制が最大限実現されるよう努める。

また、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、各研究開発グループにはNEDOが指名する研究開発責任者（テーマリーダー）を置き、その下に研究者を可能な限り結集して効果的な研究開発を実施する。

3) 最終評価

プロジェクト終了後 1 年目に最終評価を予定。

(4) 研究開発成果

以下のキーテクノロジーを活用し、平成 23 年度末には所定の削減目標値を満足するサンプル試作が可能な研究開発を推進する。

- ・ 第一原理計算を初めとする理論的解析による材料の最適設計開発技術。
- ・ 超微粒子・界面・薄膜性状の観察及び制御による、機能発現や反応メカニズムの解明と構造最適化技術の開発。
- ・ 機能性ナノ材料の製造手法の開発。
- ・ 新たな材料や原料特性に適合した製造プロセスの開発。

等

これらを元に開発される代替材料、使用量低減技術は、自動車開発、情報家電等開発の様々な分野で付加価値を生み、産業競争力創出にも資することが期待できる。

(5) 実用化・事業化の見通し

我が国の産業競争力の維持を図るためには必須の技術であるとともに、本研究で開発する製造技術により、これからの成長分野である自動車、情報家電等の材料供給リスクの低減、新たな産業分野の拡大にも寄与する。

(6) その他特記事項

本事業は第3期科学技術基本計画の中でナノテク・材料分野に列挙される「戦略重点科学技術」のうち「資源問題解決の決定打となる希少資源・不足資源代替材料革新技術」にあたるものであり、文部科学省・独立行政法人科学技術振興機構（JST）の元素戦略プロジェクトと連携し、基礎から実用化までのシームレスな支援体制を確立して行うもので、我が国の科学技術力の向上という観点からも極めて意義が高いものである。

本プロジェクトの対象元素、研究開発目標値、研究開発項目については外部有識者からなる委員会の議論により決定した。具体的には平成17年度及び平成20年度に対象元素の選定と、研究開発の方向性について検討した。平成18年度及び平成20年度には本プロジェクトの企画委員会を組織し、研究開発目標値の設定と技術開発ロードマップの策定を実施した。

5. 総合評価

本プロジェクトは、産官学連携により共通基盤的な研究開発を行う基盤研究と応用技術を探求する応用研究開発を組み合わせ、排ガス浄化触媒向けセリウム、透明導電膜向けインジウムを代替するグラフェンの早期の実用化を目指すものであり、NEDOが実施する事業として適切であると判断する。

「希少金属代替材料開発プロジェクト 基本計画（案）」に対するパブリックコメント募集の結果について

平成22年12月28日

NEDO

電子・材料・ナノテクノロジー部

NEDO POST 3において標記基本計画（案）に対するパブリックコメントの募集を行いました結果をご報告いたします。
みなさまからのご協力を頂き、ありがとうございました。

1. パブリックコメント募集期間

平成22年12月10日～平成22年12月16日

2. パブリックコメント投稿数<有効のもの>

計4件

3. パブリックコメントの内容とそれに対する考え方

ご意見の概要	ご意見に対する考え方	基本計画への反映
<p>全体について</p> <p>[意見1]（1件） ・本研究によりタッチパネルなどの製品用途向けのインジウムの消費量を抑えることができる。透明導電膜のシート抵抗が低くなれば、ディスプレイ用途への展開も可能性があると考え。特に、有機ELなどの電極に有効な材料になると思われる。 グラフェンは現在、大型基板への成膜技術が確立しておらず、実用化できないことが最大の問題でもある。大型成膜装置の開発を提案し実用化に挑戦したい。</p>	<p>本研究開発事業に賛同頂きありがとうございます。 ご指摘の通り本テーマでは、まず、現時点での膜特性から考え、実用化に近い製品用途向けの開発を行います。実用化に必要と考えられる製膜装置の開発についてご提案をよろしくお願いいたします。</p>	<p>特になし。</p>
<p>[意見2]（1件） ・当社では、ITO代替材料の研究開発や検討を行っている。グラフェンの利点は、シート抵抗を低くできる可能性と透過率を高くできる可能性があることだと思う。 当社は、ITOをリール to リールのスパッタ装置で成膜しており、今回の材料、プロセスが開発されれば、量産化は比較的容易と考えている。応用検討を進めたいと考えている。</p>	<p>本研究開発事業に賛同頂きありがとうございます。 シート抵抗と透過率は相反する関係ですが、本プロジェクトでは注力ポイントになると考えております。実用化につながるよう開発を進めてまいります。</p>	<p>特になし。</p>

<p>[意見3] (1件)</p> <p>・日本は、透明電極を用いた電気製品（タッチパネル、液晶テレビ、太陽電池など）で世界トップシェアを過去に確保していたが、最近では中国、韓国などにその座を奪われてきている。これらの電気製品は、日本の基幹産業であり、強力に開発を推進すべき産業分野である。グラフェンの課題は、低温かつ短時間での合成法の開発、シート抵抗と透明性の最適化、プロセスコストが安い製造技術の開発である。グラフェンは、海外との開発競争が激化してくはずであり、日本での応用展開を早急に行う必要がある。</p>	<p>本研究開発事業に賛同頂きありがとうございます。 日本での応用展開が進むよう研究開発を進めてまいります。</p>	<p>特になし。</p>
<p>[意見4] (1件)</p> <p>・グラフェンは極めて優れた特性を持った材料であるが、わが国はその研究及びその応用開発に関し、世界から遅れをとっている。このままでは、日本は世界から取り残されてしまう。このため日本のオリジナルな手法による工業的大量合成法を開発することは喫緊の課題である。さらに、出来る限り早くグラフェン応用の道を切り開いて世界のリーダーシップのポジションを確保することが極めて重要である。</p> <p>グラフェン応用開発研究として、①本プロジェクトオリジナルのグラフェンの大量合成法の開発、②グラフェンを用いた（ITO代替）タッチパネル用等の透明電極材料開発及びその低コスト化、③グラフェンとポリマーとのコンジット材料の開発、④高熱伝導度シートの開発、⑤ナノグラフェンの合成制御によるデバイス材料開発など取り上げることが望ましいと思う。</p> <p>プロジェクトの期間は最低5年程度の研究開発期間が必要と思われる。1年間の成果をもとに、さらなる研究開発を強力に継続することが重要と思われる。</p> <p>日本のオリジナル技術を用いたグラフェン大量合成開発とその応用技術開発が実現すれば、十分勝算がある。</p>	<p>本研究開発事業に賛同頂きありがとうございます。 本研究開発は、希少金属代替材料開発の一環として実施するものです。インジウム使用量削減を目的に、ITO代替となる透明電極用途の材料開発に重点的に取り組んでまいります。</p>	<p>特になし。</p>

研究テーマ名 希少金属代替材料開発プロジェクト

研究目的

背景、目的、必要性

背景： 希少金属は、自動車、情報家電、産業機器、省エネ型照明等の材料として使われており、わが国の成長を支える製品にとって必要不可欠であり、新たな産業分野の拡大により需要が増大する見込みである。しかしながら特定産出国に依存する鉱種が多く産出国の政策等により供給不安の懸念が出てきている。

目的、必要性： 本研究開発は研究開発項目の拡充により、代替材料開発のさらなる加速を目指すものである。

* 当該プロジェクトに研究項目⑨-3「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発」を追加するものであり、変更点を中心に記載している。

研究内容

研究開発課題 「Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発」

資源枯渇に脅かされない至極ありふれた元素を主原料とすることにより脱希少金属化を可能とさせ、現行のNd-Fe-B系磁石の特性を凌駕するポテンシャルを持つ高飽和磁束・高磁気異方性新規磁石の開発を行う。開発にあたっては、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析と磁気特性評価を通し、新たな磁性材料のバルク化技術の構築を図る。

キーテクノロジー、ブレークスルーのポイント、オリジナリティ

- Nd-Fe-B系磁石と同等以上の性能を有する新磁石の開発
 1. $Fe_{16}N_2$ 相の窒化鉄及びR-Fe-N(Rは希土類元素)系磁性材料以外の新規磁性材料の探索
 2. 原料の微細化と成形焼結の基盤技術によるナノ磁性材料のバルク化技術の開発
 3. $Fe_{16}N_2$ 相の窒化鉄または新規磁性材料によるモータの試作と特性評価

目標値とその条件および設定理由

- 中間目標：(平成25年度)
 1. ナノ磁性体粉末の合成と単分散技術の開発
 2. バルク化試作によるバルク化技術の開発指針の獲得
- 最終目標：(平成27年度)
 1. 実用化に向けたバルク化技術の開発
 2. 新規磁性材料を用いてモータを試作し、その性能を実証する。

技術戦略マップ上の位置付け

- ナノテクノロジー分野技術マップ(高度材料界面制御・高次組織制御)
 - 共通基盤 → 希少金属への依存度低減 → 高効率モータ
- 3R分野の技術マップ
 - 金属資源3R → 代替素材技術等 に位置付けられている。

プロジェクトの規模

- 事業費総額 8億円
- 研究開発期間 5年間

その他関連図表

キーテクノロジーと製品化のイメージ

① Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発

電気自動車やハイブリッド自動車の駆動モータ、IT機器、家電製品等に用いられるモータを新規磁性材料で実用化する。

- (1) 耐熱性を要する電気、ハイブリッド自動車の駆動用モータを新規磁性材料で代替する。
 - (2) IT機器、家電製品等のNd-Fe-B系磁石を用いた小型高性能モータを新規磁性材料で代替する。
- 等

上記は例示であり、公募により優れた提案があった場合は、(1)(2)以外にも実施するものとする。



事前評価書

	作成日	平成23年6月30日
1. 事業名称 (コード番号)	希少金属代替材料開発プロジェクト (P08023)	
2. 推進部署名	電子・材料・ナノテクノロジー部	
3. 事業概要	<p>(1) 概要：</p> <p>1) 背景 希少金属は、自動車、情報家電、産業機器、省エネ型照明等の材料として使われており、わが国の成長を支える製品にとって必要不可欠であり、新たな産業分野の拡大により需要が増大する見込みである。しかしながら特定産出国に依存する鉱種が多く産出国の政策等により供給不安の懸念が出てきている。</p> <p>2) 目的 本研究開発は、研究開発項目の変更と拡充により、代替材料開発のさらなる加速を目指すものである。</p> <p>3) 研究開発概要 資源枯渇に脅かされない至極ありふれた元素を主原料とすることにより脱希少金属化を可能とさせ、現行の Nd-Fe-B 系磁石の特性を凌駕するポテンシャルを持つ高飽和磁束・高磁気異方性新規磁石の開発を行う。開発にあたっては、モータ用途への応用展開をにらみつつ、ナノレベルの微細構造・形成解析と磁気特性評価を通し、新たな磁石のバルク化技術の構築を図る。 ネオジム及びジスプロシウムを含まない新規磁性材料による電気自動車、ハイブリット自動車の駆動モータ、IT機器、家電製品等に使用される小型高性能モータの実用化を目指した技術開発を行うものであり、研究テーマは以下の通り、 「Nd-Fe-B 系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発」</p> <p>(2) 事業規模：総事業費 8 億円 このうち平成23年度事業費は 2.8 億円</p> <p>(3) 実用化期間：平成23年度～27年度（5年間）</p>	
4. 評価の検討状況 ※ (※平成23年度に公募を予定しているプロジェクト拡充部分に関する事項を中心に記載)		

(1) 事業の位置付け・必要性

1) 位置付け

本事業は第3期科学技術基本計画の中で以下のとおり位置付けられる。

- ① ナノテク・材料分野の戦略重点科学技術
資源問題解決の決定打となる希少資源・不足資源代替材料革新技術
- ② ナノテクノロジー分野技術マップ（高度材料界面制御・高次組織制御）
共通基盤 ⇒ 希少金属への依存度低減 ⇒ 高効率モータ
- ③ 3R分野の技術マップ
金属資源3R ⇒ 代替素材技術等

2) 必要性

我が国の低炭素社会実現に必要な電気自動車等の製品においては焼結永久磁石がキーデバイスであり、高保磁力を得るためにレアメタルを使用している。これらレアメタルは一部の外国に供給を依存しているため研究開発項目③でジスプロシウムの使用量低減技術を開発しているところである。しかし昨今の世界的な環境意識の高まりから今後、これら製品の需要増加が見込まれるため、中長期的な視点から抜本的な対策が求められる。

このため、我が国の強みであるナノテク技術や新素材・部材の開発力を生かし、レアメタルに依存しない低炭素社会の実現を可能とする新規永久磁石の研究開発を促進する必要がある。

これまでにネオジム磁石そのものの代替として研究開発項目⑨-1で窒化鉄系やR-Fe-N系（Rは希土類元素）の磁性材料の研究開発が行われたが、実用化までには至っていない。

従って、ネオジム及びジスプロシウムを代替する新規磁性材料の実用化に向けた技術開発の加速を目指す必要がある。

(2) 研究開発目標の妥当性

<目標>

- 1) 設定理由：希少金属各元素のリスク調査、需要動向予測、研究開発のシーズ、経業政策等を基に、鉱種の選定とその代替とした。
- 2) 要件：機能、製造コストは現状と同等とする。
- 3) 目標値：中間目標を設定し中間評価を実施する
 - ① 中間目標 【平成25年度】
バルク化のための技術開発
実用化に則したバルク化の要素技術開発
 - ② 最終目標 【平成27年度】
実用化に則したバルク化の技術開発
モータを試作し、その性能を実証する。

<妥当性>

Nd-Fe-B系磁石を代替する新規磁性材料の実用化に向けた技術開発を進めることは自動車産業、情報家電産業にとって必要不可欠なものであり、研究開発の目標もリスク調査から出てきた需要予測からのものであり妥当と判断する。なお、この目標については、今後の委員会ならびに有識者ヒヤリング等で聴取した意見を適切に反映させる。

(3) 研究開発マネジメント

1) 公募要領

平成22年度までに実施したプロジェクトでは、サンプル試作まで完成していることから、今後は実用化に向けた開発スピード重視の観点から、課題設定型の提案公募方式とする。

2) 研究開発体制

研究開発テーマごとに、それら実施者間において共同研究契約等を締結する研究体制を構築する。各研究体制の構築にあたっては、企業と大学等との産学連携研究体制および川上と川下の垂直連携体制が最大限実現されるよう努める。

また、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、各研究開発グループにはNEDOが指名する研究開発責任者（テーマリーダー）を置き、その下に研究者を可能な限り結集して効果的な研究開発を実施する。

3) 評価

平成25年度に中間評価、プロジェクト終了後1年目に最終評価を予定。

(4) 研究開発成果

さらなる新規磁性材料の探索、原料のナノレベルの微細化と単分散技術、成型焼結技術をキーテクノロジーとし、平成27年度末（一部平成25年度末）には所定の新規磁性材料への代替目標を満足する様に研究開発を推進する。

- ・ ナノ磁性体粉末の合成と単分散技術の開発（平成25年度）
- ・ バルク化試作によるバルク化技術の開発指針の獲得（平成25年度）
- ・ 実用化に向けたバルク化技術の開発
- ・ 新規磁性材料を用いてモータを試作し、その性能を実証する。等

これらを元に開発される代替材料は、自動車開発、情報家電等開発の様々な分野で付加価値を生み、産業競争力創出にも資することが期待できる。

(5) 実用化・事業化の見通し

我が国の産業競争力の維持を図るためには必須の技術であるとともに、本研究で開発する製造技術により、これからの成長分野である自動車、情報家電等の材料供給リスクの低減、新たな産業分野の拡大にも寄与する。

(6) その他特記事項

本事業は第3期科学技術基本計画の中でナノテク・材料分野に列挙される「戦略重点科学技術」のうち「資源問題解決の決定打となる希少資源・不足資源代替材料革新技術」にあたるものであり、文部科学省・独立行政法人科学技術振興機構（JST）の元素戦略プロジェクトと連携し、基礎から実用化までのシームレスな支援体制を確立して行うもので、我が国の科学技術力の向上という観点からも極めて意義が高いものである。

本プロジェクトの対象元素、研究開発目標値、研究開発項目については外部有識者からなる委員会の議論により決定した。具体的には平成17年度及び平成20年度に対象元素の選定と、研究開発の方向性について検討した。平成18年度及び平成20年度には本プロジェクトの企画委員会を組織し、研究開発目標値の設定と技術開発ロードマップの策定を実施した。

5. 総合評価

本プロジェクトは、産官学連携により共通基盤的な研究開発を行う基盤研究と応用技術を探求する応用研究開発を組み合わせ、Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発の早期の実用化を目指すものであり、NEDOが実施する事業として適切であると判断する。

「希少金属代替材料開発プロジェクト 基本計画（案）」に対するパブリックコメント募集の結果について

平成 23 年 7 月 21 日

NEDO

電子・材料・ナノテクノロジー部

NEDO POST 3 において標記基本計画（案）に対するパブリックコメントの募集を行いました結果をご報告いたします。
みなさまからのご協力を頂き、ありがとうございました。

1. パブリックコメント募集期間

平成 23 年 7 月 7 日～平成 23 年 7 月 20 日

2. パブリックコメント投稿数＜有効のもの＞

計 0 件

以上

⑨-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の研究

H22 年度

【特許】

1. 出願（未公開のため、件数・出願番号を公表しない）
国立大学法人東北大学、戸田工業株式会社
2. 出願（未公開のため、件数・出願番号を公表しない）
国立大学法人京都大学、国立大学法人東北大学、戸田工業株式会社
3. 出願：特願 2011-058093「鉄ナノ粒子、およびその製造方法」帝人株式会社

【論文】

1. 「制御系まで含めた永久磁石モータの磁気回路解析」、河野陽輔、後藤博樹、中村健二、一ノ倉理、日本磁気学会誌、Vol. 35、No. 2、pp. 112-117 (2011)。
2. 「可変起磁力と可変磁気抵抗を用いたIPM モータのRNA モデル」、鈴木邦彰、中村健二、一ノ倉理、日本磁気学会誌、Vol. 35、No. 3、pp. 281-284 (2011)。
3. 「RNA のための渦電流計算手法に関する考察」、吉田征弘、中村健二、一ノ倉理、日本磁気学会誌、Vol. 35、No. 4、pp. 399-403 (2011)。
4. “High performance Sm-Fe-N magnets prepared by compression shearing method”, Tetsuji Saito, Journal of Physics Conf. Series, vol.266, 012043 (2011).

【研究発表・講演】

1. 「回転子の回転運動を表現可能なIPM モータのRNA モデル」、鈴木邦彰、中村健二、一ノ倉理、電気関係学会東北支部連合大会、2010 年8 月26 日（八戸）
2. 「MATLAB/Simulink を用いた永久磁石モータの磁気回路解析」、河野陽輔、中村健二、一ノ倉理、電気関係学会東北支部連合大会、2010 年8 月26 日（八戸）
3. 「電気回路網モデルによる渦電流計算手法」、吉田征弘、中村健二、一ノ倉理、電気関係学会東北支部連合大会、2010 年8 月26 日（八戸）
4. 「可変起磁力と可変磁気抵抗を用いたIPM モータのRNA モデル」、鈴木邦彰、中村健二、一ノ倉理、日本磁気学会学術講演会、2010 年9 月5 日（つくば）
5. 「RNA のための渦電流計算手法に関する考察」、吉田征弘、中村健二、一ノ倉理、日本磁気学会学術講演会、2010 年9 月6 日（つくば）
6. 「制御系まで考慮可能な永久磁石モータの磁気回路モデル」、河野陽輔、中村健二、一ノ倉理、日本磁気学会学術講演会、2010 年9 月6 日（つくば）
7. 「冷間圧縮せん断法による希土類磁石粉末の固化成形」、北島大、齋藤哲治
日本金属学会2010 年秋期大会、2010 年9 月25 日～9 月27 日
8. 「制御系設計に応用可能な永久磁石モータの磁気回路モデル」、河野陽輔、後藤博樹、中村健二、一ノ倉理、電気学会回転機研究会、2010 年10 月20 日（北見）
9. 「RNA のための渦電流回路網モデルに関する考察」、吉田征弘、中村健二、一ノ倉理、電気学会マグネティックス研究会、2010 年11 月25 日（秋田）
10. 「冷間圧縮せん断法による希土類磁石の作製」、齋藤哲治、北島大
電気学会マグネティックス研究会 2010 年12 月2 日 MAG-10-176.
11. 「高性能Sm-Fe-N 磁石の作製」、齋藤哲治、北島大
平成 23 年電気学会全国大会、2011 年3 月16 日～3 月18 日。

【受賞】

1. 電気学会 優秀論文発表賞、「制御系設計に応用可能な永久磁石モータの磁気回路モデル」、河野陽輔（2011）
2. 電気学会 優秀論文発表賞、「MATLAB/Simulink を用いた永久磁石モータの磁気回路解析」、河野陽輔（2011）

【その他公表（プレス発表等）】

- ・ プレス発表（平成23 年3 月4 日@NEDO・日比谷オフィス）
- ・ 日本経済新聞（平成23 年3 月4 日）
「磁石材料 レアアース使わず合成 戸田工業・東北大などEV モータに活用」
- ・ 日刊工業新聞（平成23 年3 月4 日）
「希土類不要の磁石粉末 高性能モータ用向け 東北大などが作製」
- ・ 化学工業日報（平成23 年3 月4 日）
「高性能磁石向け材料レアアース代替に道 強磁性窒化鉄の粉末生成に成功」

- ・日経産業新聞（平成23年3月4日）
「微細窒化鉄で磁石 EV 向け、レアアース不要 東北大など素材開発」
- ・中国新聞（平成23年3月4日）
「新磁石の材料合成成功 戸田工業など レアアース不要次世代車のモータに活用」
- ・朝日新聞（平成23年3月4日）
「レアアース不要 磁石開発に道筋 東北大グループ」
- ・読売新聞（平成23年3月4日）
「レアアース使わず強力磁石、モータ4割小さく」
- ・NHK ニュース（平成23年3月3日） 「レアアース使わない磁石開発」
- ・日経ビジネス 2010.4.26 p.36-40
「特集 “金属、千年の革新記 電池・磁石大国が世界を変える必然”」
- ・日経エレクトロニクス 2010.9.20 p.63-64
「特集 “新生モータ全開 電動車両が進化を牽引”」
- ・日経ものづくり 2011.1月号 p.57-58
「特集 “脱レアメタル依存症”」
- ・日経ものづくり 2011.4月号 p.29
「東北大など、窒化鉄の粉末生成に成功レアアース不要の強力磁石として期待」

⑨-3-1 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／窒化鉄ナノ粒子の大量合成技術およびバルク化技術の構築

H23 年度

【特許】

1. 出願（未公開のため、件数・出願番号を公表しない）
国立大学法人東北大学、戸田工業株式会社

【論文】

1. “Perpendicular easy axis alignment of FePt nanoparticles on a platinum-(001) substrate for high-density magnetic recording”, I. Matsui, T. Ogi, F. Iskandar, K. Okuyama, Journal of Applied Physics (2011).
2. “Liquid-phase synthesis of CaF_2 particles and their low refractive index characterization”, A. B. D. Nandiyanto, T. Ogi, A. Ohmura, E. Tanabe K. Okuyama, KONA Powder and Particle Journal (2011).
3. “Decolorization of beads-milled TiO_2 nanoparticles suspension in an organic solvent”, I.M. Joni, T. Ogi, A. Purwanto, K. Okuyama, T. Saitoh, K. Takeuchi, Advanced Powder Technology (2012).
4. “ CuO/WO_3 and Pt/WO_3 Nanocatalysts for Efficient Pollutant Degradation using Visible Light Irradiation”, H. Widiyandari, A. Purwanto, R. Balgis, T. Ogi, K. Okuyama, Chemical Engineering Journal (2012).
5. “Surface functionalization for dispersing and stabilizing hexagonal boron nitride nanoparticle by bead milling”, I.M. Joni, R. Balgis, T. Ogi, K. Okuyama, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects (2012).
6. “Nanostructured design of electrocatalyst support materials for high performance PEM fuel cells applications”, R. Balgis, G. M. Anilkumar, S. Sago, T. Ogi, K. Okuyama, Journal of Power Sources (2012).
7. 「ナノ粒子の合成と機能化技術の最新動向」、李 信榮、荻 崇、奥山喜久夫、化学装置 (2011).

【研究発表・講演】

1. “Tailor-Made Nano Materials with Modulated Spin Structure for Highly Qualified Spin Related Devices 【invited】”, M. Takahashi, Moscow International Symposium on Magnetism (MISM-2011), 2011年8月24日（モスクワ）.
2. 「鉄-窒素化合物を活用した新規永久磁石用材料」【招待講演】、小川智之、高橋研、第35回日本磁気学会学術講演会、2011年9月27日（新潟）.
3. “ Fe_{16}N_2 Interstitial Compound -New Candidate for Permanent Magnetic Material with Rare Earth Element Free - 【invited】”, M. Takahashi and T. Ogawa, 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Material (MMM), 2011年10月30日（フェニックス）.
4. 「 Fe_{16}N_2 窒素侵入型化合物を活用した新規永久磁石用材料 ～薄膜からナノ粒子まで～」【依頼講演】、高橋研、小川智之、日本真空協会2011年6月研究例会 2011年6月17日（東京）.
5. “Iron-Nitride Compound as a New Candidate for Futured Permanent Magnetic Material, - From Thin Film to Bulk -” 【invited】.M. Takahashi and T. Ogawa, International Conference on Advanced Electromaterials (ICAE 2011), 2011年11月7日（Jeju）.
6. “窒素侵入型化合物を活用した新規磁石用材料 “ 【依頼講演】、小川智之、SPRING-8利用推進協議会 先端磁性材料研究会「永久磁石材料と新開発磁性材料」、2012年1月20日（東京）.
7. 「鉄基ナノ粒子の低温化学合成の現状と今後の展望」【依頼講演】、小川智之、高橋研、日本磁気学会 第179回研究会、2011年7月27日（東京）.
8. “Current Perspective on Low Temperature Synthesis of Fe-based Nanoparticles and Their Magnetism” 【invited】、T. Ogawa and M. Takahashi, The 5th International Conference on Sensors (ASIASENSE 2011), 2011年10月23- 26日（Jeju）.
9. 「レアアースフリー-BCNO蛍光体の合成」、沖野 浩奨、荻 崇、奥山 喜久夫、第4回化学工学3支部合同福井大会、2011年12月8日（福井）.
10. 「 Pt/WO_3 ナノ粒子の合成と光触媒特性の粒子径依存性」、兼田 慎平、荻 崇、奥山 喜久夫、第4回化学工学3支部合同福井大会、2011年12月8日（福井）.
11. “New Strategy for Material Synthesis on the Use of Rare Metal”、奥山喜久夫、荻崇、Asep Bayu Dani

- Nandiyanto、木崎原裕、チューリッヒ工科大学(ETH)-広島大学技術交流会、2012年1月17日(チューリッヒ)。
12. 「New Strategy for Material Synthesis on the Use of Rare Metal」、奥山 喜久夫、金沢大学大学院自然科学研究科 日中韓環境・エコ技術特別コース 大気環境研究にかかる日韓シンポジウム2012、2012年2月1日(金沢)。

【受賞】

1. 平成24年3月16日荻崇、奥山喜久夫：化学工学会粒子・流体プロセス部会から「動画賞(教育部門)」を受賞
受賞講演題目：エアロゾル挙動の可視化と噴霧液滴の計測

【その他公表】

1. Nanotech2012においてNEDOブース内でパネル・成果物の展示(2012年2月15～17日)
2. 元素戦略／希少金属代替材料開発合同戦略会議においてパネル展示(2012年2月29日)

H24 年度

【特許】

1. 出願（未公開のため、件数・出願番号を公表しない）
独立行政法人産業技術総合研究所

【論文】

1. “Mesopore-free silica shell with nanometer-scale thickness-controllable on cationic polystyrene core”, Asep Bayu Dani Nandiyanto, Toru Iwaki, Takashi Ogi and Kikuo Okuyama, J. Colloid Interface Sci. 389, 134-146 (2012).

【研究発表・講演】

1. “Synthesis and magnetic characterization of \cdot - Fe_{16}N_2 Interstitial Compound - New Candidate for Permanent Magnetic Material with Rare Earth Element Free - 【invited】”, M. Takahashi and T. Ogawa, IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG 2012), 2012年5月7-11日（バンクーバー）.
2. 「レアメタルを用いない新規永久磁石の開発」【依頼講演】、小川智之、第三回京都SMI産学公連携セミナー、2012年6月26日（東京）.
3. 「コアシェルナノ粒子のバルクプロセス」、杵鞭義明、砥綿篤哉、安岡正喜、社団法人粉体粉末冶金協会 春季講演大会、平成24年5月23日.

【その他公表（プレス発表等）】

1. 電波新聞（平成24年4月5日）
「レアアースレス磁石＝窒化鉄＝の永久磁石殿堂入りを目指して」

⑨-3-2 Nd-Fe-B系磁石を代替する新規永久磁石の実用化に向けた技術開発／非平衡状態相の形成を利用したNd系磁石代替実用永久磁石の研究開発

【論文】

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、ページ番号	査読	発表年
1	H. Fukunaga, Y. Yokoi, M. Nakano, T. Yanai	長崎大学	Numerical Study of Enhanced Coercivity of a Magnetically Hard Grain with Thin Surface Layers due to Antiferromagnetic Coupling	IEEE Transactions on Magnetics, Vol.48 (2012), to be published.	有	2012
2	H. Fukunaga, T. Kamikawatoko, A. Tou, M. Nakano, T. Yanai, and F. Yamashita	長崎大学	Effect of Preparation Condition on Magnetic Properties of Multi-Layered Nd-Fe-B/a-Fe Thick Film-Magnets Prepared by PLD Method	IEEE Transactions on Magnetics, Vol.48 (2012), to be published.	有	2012
3	Y. Yokoi, M. Nakano, T. Yanai, and H. Fukunaga	長崎大学	Effect of Antiferromagnetically Coupled Thin Surface Layers on Coercivity of A Magnetically Hard Grain - Numerical Calculation -	Proceeding of REPM 2012, Nagasaki, Japan, September 2012 pp. 337-340 (2012).	無	2012
4	T. Saito and H. Miyoshi	千葉工業大学	Magnetic properties of Sm ₅ Fe ₁₇ /Fe composite magnets produced by spark plasma sintering method	J. Appl. Phys. 111, pp.07B534-1-3 (2012)	有	2012
5	T. Saito, H. Miyoshi, and D. N. Hamane	千葉工業大学	Structures and magnetic properties of Sm ₅ Fe ₁₇ melt-spun ribbon	J. Appl. Phys. 111, pp.07E322-1-3 (2012)	有	2012
6	T. Saito and H. Miyoshi	千葉工業大学	Production of Sm ₅ Fe ₁₇ -based magnets by melt-spinning	Proceeding of REPM 2012, Nagasaki, Japan, September 2012 pp. 119-122 (2012)	無	2012
7	T. Saito and R. Nishimura	千葉工業大学	Hard magnetic properties of Mn-Ga melt-spun ribbons	J. Appl. Phys. 112, pp. 083091-1-4 (2012).	有	2012

【外部発表など】

番号	発表者	所属	タイトル	発表媒体	発表年月日
1	福永博俊、横井佑司、中野正基、柳井武志	長崎大学	硬磁性結晶表面に存在する反強磁性結合薄層の保磁力に及ぼす影響 —計算機解析—	電気学会マグネティクス研究会	2011.11.15
2	藤昭徳、上川床崇・柳井武志、中野正基、福永博俊	長崎大学	PLD法により作製したNd-Fe-B/a-Fe多層厚膜磁石の磁気特性	電気学会全国大会	2012.3.23
3	横井佑司、中野正基、柳井武志、福永博俊	長崎大学	反強磁性結合した強磁性表面薄層を有する硬磁性結晶の保磁力 —計算機解析—	電気学会基礎・材料・共通部門大会	2012.9.20
4	H. Fukunaga, M. Nakano, T. Yanai and Y. Yokoi	長崎大学	Enhancement of Coercivity of A Magnetically Hard Grain due to Anti-ferromagnetically Coupled Thin Surface Layers - Numerical calculation	the 2012 International Magnetics Conference	2012.5.8
5	H. Fukunaga, T. Kamikawatoko, A. Tou, M. Nakano, T. Yanai and F.	長崎大学	Effect of Preparation Condition on Magnetic Properties of Nd-Fe-B/a-Fe Multi-layered Thick film Magnets Prepared by PLD Method	the 2012 International Magnetics Conference	2012.5.8

	Yamashita				
6	Y. Yokoi, M. Nakano, T. Yanai, and H. Fukunaga	長崎大学	Effect of Antiferromagnetically Coupled Thin Surface Layers on Coercivity of A Magnetically Hard Grain - Numerical Calculation -	The 22nd International Workshop on Rare-Earth Permanent Magnets and their Applications	2012.9.3
7	牧原峻佑、藤 昭徳、柳井武志、中野正基、福永博俊	長崎大学	Sm-Co 系積層型ナノコンポジット磁石の磁気特性に関する研究	電気関係学会九州支部連合大会	2012.9.25
8	R. Horikawa, A. Tou, M. Nakano, T. Yanai, H. Fukunaga	長崎大学	Temperature dependence of magnetic properties of SmCo ₅ /α-Fe nanocomposite magnets with layered structure	The 2012 International Conference of Asian Union of Magnetics Societies	2012.10.2
9	齋藤哲治、三好博也	千葉工業大学	放電プラズマ焼結法により作製した Sm ₅ Fe ₁₇ 系複合磁石の磁気特性	粉体粉末冶金協会秋季大会	2011.10.28
10	T. Saito, H. Miyoshi	千葉工業大学	Magnetic properties of Sm ₅ Fe ₁₇ /Fe composite magnets produced by spark plasma sintering method	56th Conference on Magnetism and Magnetic Materials	2011.10.31
11	T. Saito, H. Miyoshi, and D. N. Hamane	千葉工業大学	Structures and magnetic properties of Sm ₅ Fe ₁₇ melt-spun ribbon	56th Conference on Magnetism and Magnetic Materials	2011.11.1
12	齋藤哲治、三好博也	千葉工業大学	新しい希土類磁石の研究	日本電子材料技術協会第 48 回秋季講演大会	2011.11.10
13	齋藤哲治、三好博也	千葉工業大学	Sm ₅ Fe ₁₇ 系磁石の研究開発	電気学会マグネティックス研究会	2011.12.15
14	齋藤哲治、三好博也	千葉工業大学	急冷凝固法で作製した Sm-Fe 系磁石の磁気特性	電気学会全国大会	2012.3.23
15	齋藤哲治、秋山知也、板倉賢	千葉工業大学、九州大学	Co-Zr-B 系合金急冷薄帯の磁気特性	日本金属学会春期大会	2012.3.29
16	齋藤哲治	千葉工業大学	急冷凝固法により作製した Sm-Fe 合金の磁気特性	第 29 回希土類討論会	2012.5.15
17	齋藤哲治	千葉工業大学	急冷凝固法により作製した Sm-Zr-Fe 系磁石の磁気特性	粉体粉末冶金協会春季大会	2012.5.24
18	T. Saito and H. Miyoshi	千葉工業大学	Production of Sm ₅ Fe ₁₇ -based magnets by melt-spinning	The 22nd International Workshop on Rare-Earth Permanent Magnets and their Applications	2012.9.4
19	秋山知也、齋藤哲治	千葉工業大学	急冷凝固法により作製した Co-Zr-B 合金の磁気特性	電気学会基礎・材料・共通部門大会	2012.9.20
20	西村隆二、齋藤哲治	千葉工業大学	急冷凝固法により作製した Mn 系合金の磁気特性	電気学会基礎・材料・共通	2012.9.20

				部門大会	
21	Tetsuji Saito	千葉工業大学	Structures and magnetic properties of Sm ₅ Fe ₁₇ melt-spun ribbon	The 2012 International Conference of Asian Union of Magnetism Societies	2012.10.2
22	齋藤哲治	千葉工業大学	新しい永久磁石材料の研究開発	電気学会マグネティックス研究会	2012.12.6
23	T. Saito, T. Akiyama, and M. Itakura	千葉工業大学, 九州大学	Structures and magnetic properties of Co-Zr-Mo-B melt-spun ribbons	12th Joint MMM/Intermag Conference	2013.1.18
24	T. Saito and D. N. Hamane,	千葉工業大学, 東京大学	Magnetic properties of Sm-Zr-Fe melt-spun ribbons	12th Joint MMM/Intermag Conference	2013.1.16
25	町田憲一、上之原勝、西山啓三、伊東正浩	大阪大学	Sm ₂ Fe ₁₇ C _x および Sm ₂ Fe ₁₇ C _x N _y の合成と磁気特性	日本セラミックス協会年会	2012.3.21
26	K. Machida, K. Nishiyama, M. Uenohara, M. Itoh, and T. Horikawa	大阪大学	Magnetic Properties of Application of Sm ₂ Fe ₁₇ C _x N _y	The 22nd International Workshop on Rare-Earth Permanent Magnets and their Applications	2012.9.3
27	町田憲一、西山啓三、堀川高志、伊東正浩、八田眞一郎、中尾武寿	大阪大学	鉄系炭窒化物の熱安定とハード磁性材料特性	日本セラミックス協会第25回秋季シンポジウム	2012.9.21
28	S. Jung, T. Horikawa, M. Itoh, S. Hatta, K. Machida	大阪大学	Preparation and Magnetic Properties of Iron-manganese Pnictides	日本セラミックス協会第25回秋季シンポジウム	2012.9.20
29	鄭成賢、堀川高志、伊東正浩、町田憲一	大阪大学	MnBi系複合磁石の作製と磁気特性	電気学会マグネティックス研究会	2012.12.6
30	井藤幹夫	大阪大学	新規永久磁石(新聞発表)	レアメタルニュース	2012.2.1

【受賞】

番号	受賞者	所属	賞名	タイトル	受賞年月日
1	横井佑司、中野正基、柳井武志、福永博俊	長崎大学	電気学会九州支部平成23年度論文発表賞B賞	異方性ナノコンポジット磁石の磁気特性改善に向けた計算機シミュレーション	2012.1.16
2	堀川遼、横井祐司、柳井武志、中野正基、福永博俊	長崎大学	電気学会マグネティックス技術委員会研究奨励賞	硬磁性結晶表面に存在する反強磁性結合薄層の保磁力に及ぼす影響ー計算機解析ー	2012.9.20
3	渡邊奈月、大尾岳史、板倉賢、西田稔	九州大学	日本金属学会金属組織写真賞(透過電子顕微鏡部門)最優秀賞	「収差補正 STEM-EDS 原子カラムマッピングによる強磁性 Nd ₂ Fe ₁₄ B 微細粒表面の Dy 置換サイトの直接観察	2012.3.28

⑩-1A 排ガス浄化向けセリウム使用量低減代替材料開発／排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発

【特許】

番号	出願者	出願番号	国内 外国 PCT	出願日	状態	名 称	発明者
1	名古屋工業大学	特 願 2011-147281	国内	平成 23 年 7 月 1 日	出 願 ／ 未 公開	金属複合酸化物材料、それを用いた浄化触媒およびそれらの製造方法	小澤正邦
2	名古屋工業大学	特 願 2011-153634	国内	平成 23 年 7 月 12 日	出 願 ／ 未 公開	形態制御した材料とその製造方法	小澤正邦
3	名古屋工業大学	特 願 2011-172506	国内	平成 23 年 8 月 8 日	出 願 ／ 未 公開	白金微粒子、担持触媒の製造方法及び浄化用触媒	小澤正邦、藤本啓、羽田政明
4	名古屋工業大学	特 願 2012-45995	国内	平成 24 年 3 月 2 日	出 願 ／ 未 公開	ジルコニアとセリアとの複合材料、その製造方法およびそれを含む触媒	小澤正邦
5	名古屋工業大学	特 願 2012-75256	国内	平成 24 年 3 月 28 日	出 願 ／ 未 公開	酸素貯蔵能セラミック材料とその製造方法、および触媒	小澤正邦、李孔齋、羽田政明
6	アドマテックス ／名古屋工業大学	特 願 2012-77193	国内	平成 24 年 3 月 29 日	出 願 ／ 未 公開	複合酸化物粉末	楊原 武、山田美幸、小澤正邦
7	アドマテックス ／名古屋工業大学	特 願 2012-77201	国内	平成 24 年 3 月 29 日	出 願 ／ 未 公開	複合酸化物粉末の製造方法	楊原 武、山田美幸、小澤正邦
8	ノリタケカンパニー ／名古屋工業大学	特 願 2012-173426	国内	平成 24 年 8 月 3 日	出 願 ／ 未 公開	自動車排ガス浄化用助触媒材およびその製造方法	山田祐貴、高橋洋祐、小澤正邦
9	ノリタケカンパニー ／名古屋工業大学	特 願 2012-173427	国内	平成 24 年 8 月 3 日	出 願 ／ 未 公開	自動車排ガス浄化用助触媒材およびその製造方法	山田祐貴、高橋洋祐、小澤正邦
10	ノリタケカンパニー		国内		出 願 準 備 中	金属複合酸化物とその製造方法	高橋洋祐、山田祐貴
11	名古屋工業大学		国内		出 願 準 備 中	金属複合酸化物とその製造方法	小澤正邦、小林克敏
12	名古屋工業大学		国内		出 願 準 備 中	排ガス浄化触媒のその製造方法	小澤正邦、羽田政明

(※Patent Cooperation Treaty :特許協力条約)

【論文】

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、ページ番号	査読	発表年
1	Masatomo Hattori, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	The effect of heat treatment on interaction, microstructure and oxygen storage capacity of Pt added CeO ₂ on alumina	Journal of Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, Vol.58, No.10 (2011) p511-515	有	2011
2	Masakuni Ozawa, Osamu Kato, Naokage Tanaka, Wei Yan, Masaaki Haneda	名古屋工業大学	Effect of lanthanum addition on thermal stability and benzene removal activity of iron oxide alumina composite powders	Journal of Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, Vol.59, No.2 (2012) p80-84	有	2012
3	Katsutoshi Kobayashi, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Hydrothermal synthesis of CeO ₂ nanocrystals using oleate-modified precipitation method	Advanced Materials Research Vols. 463-464 (2012) p1501-1505	有	2012
4	Kongzhai Li, Masaaki Haneda and Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	The synthesis of iron oxides with different phases or exposure crystal planes and their catalytic property for propene oxidation	Advanced Materials Research Vols. 463-464 (2012) p189-193	有	2012
5	網本正哉、木村健志、羽田政明、小澤正邦	名古屋工業大学	セリアジルコニア系粉末の共沈法による合成と分光特性評価	粉体および粉末冶金 Vol.59, No.2 (2012) p75-79	有	2012
6	Kongzhai Li, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Enhancement of Reducibility and Oxygen Storage Capacity of Ce-Fe Mixed Oxides by Repetitive Redox Treatment	Chemistry Letters Vol.41 No.8 (2012)p.837-838	有	2012
7	Naoto Kamiuchi, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa,	名古屋工業大学	CO oxidation activities over Pt/Ce-Zr oxide and Pt/Al ₂ O ₃ catalysts	Catalysis Today, in press available online 22 May 2012	有	2012
8	Kobayashi Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Preparation of Organic-modified Ceria Nanocrystals with Hydrothermal Treatment	Ceramics Transactions in press	有	2012
9	Masakuni Ozawa, Kazue Matusda, Yuri Miura, Masatomo Hattori, Takahiro Oukouchi, Hiroki Yuzuriha, Masaaki Haneda	名古屋工業大学	Dispersion state and oxygen storage capacity properties of nanoparticle ceria and zirconia supported on alumina by impregnation process	Journal of Physics: Conference series vol.379, (2012) 012014	有	2012
10	Amimoto, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Phase analysis and optical evaluation of ceria-zirconia prepared by coprecipitation method	Journal of Physics: Conference series vol.379, (2012) 012018	有	2012
11	Kongzhai Li, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Modification of CeO ₂ on the redox property of Fe ₂ O ₃	Materials Letters, in press available online	有	2012
12	Masakuni Ozawa, Hiroki Yuzuriha, Masaaki Haneda	名古屋工業大学	Total oxidation of toluene and oxygen storage capacity of zirconia-modified ceria zirconia	Catalysis Communication, in press available online	有	2012
13	Masatomo Hattori, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Oxygen Release Property of Ceria/Alumina Composite Powder in Reducing Atmosphere at Low Temperatures	Journal of Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, in press	有	
14	Kongzhai Li, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Novel Oxygen Evolution of CeO ₂ based materials after thermal/redox treatments	Applied Catalysis A, submitted	有	
15	Hiroki Yuzuriha, Masatomo Hattori Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Oxygen storage capacity and hydrocarbon removal property of zirconia-modified ceria-based catalyst	Proceedings of Internal Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society,	無	2011

				Ecomaterials and Ecoinnovation for Global Sustainability Vol.2 (2011)		
16	Masaya Amimoto, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Phase analysis and optical evaluation of ceria zirconia prepared by coprecipitation	Proceedings of Internal Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society, Ecomaterials and Ecoinnovation for Global Sustainability Vol.2 (2011)	無	2011
17	Masakuni Ozawa, Masatomo, hattori, Hiroki Yuzuriha, Yuri Miura, Masaaki Haneda	名古屋工業大学	Dispersion state and oxygen storage capacity of nanoparticulate ceria and zirconia supported on alumina	Proceedings of Internal Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society, Ecomaterials and Ecoinnovation for Global Sustainability Vol.2 (2011)	無	2011
18	Takahiro Okouchi, Masatomo, hattori, Hiroki Yuzuriha, Yuri Miura, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Oxygen storage capacity and VOC removal property of nanoparticulate ceria and zirconia supported	Proceedings of Internal Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society, Ecomaterials and Ecoinnovation for Global Sustainability Vol.2 (2011)	無	2011
19	小林克敏、羽田政明、小澤正邦	名古屋工業大学	オレイン酸修飾沈殿法を用いたセリアナノ結晶の水熱合成	名古屋工業大学セラミックス基盤工学研究センター年報 Vol. 11(2011), p1-5	無	2012
20	山田祐貴、高橋洋祐、左合澄人、小澤正邦	ノリタケ、名古屋工業大学	自動車触媒用セリアジルコニア粒子からのセリウム量削減	セラミックデータブック 2012年版(工業製品技術協会)印刷中	無	2012

【学会発表】

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、ページ番号	発表年
1	朋部将朋、羽田政明、小澤正邦	名古屋工業大学	セリア添加アルミナの低温還元熱処理と酸素貯蔵能	第 28 回希土類討論会 平成 23 年 5 月 12-13 日 東京	2011
2	杠 洋輝、丸山兼泰、羽田政明、小澤正邦	名古屋工業大学	セリアジルコニア触媒の作製と VOC 浄化性能	第 60 期日本材料学会学術講演会 平成 23 年 5 月 26 日 京都	2011
3	藤本 啓 加藤亮二 羽田政明 小澤正邦	名古屋工業大学	水溶液中での白金ナノ粒子の合成と評価	第 60 期日本材料学会学術講演会 平成 23 年 5 月 26 日 京都	2011
4	網本正哉, 木村健史, 羽田政明, 小澤正邦	名古屋工業大学	セリアジルコニア系粉末の共沈法による合成と分光特性評価	平成 23 年度粉体粉末冶金協会春季研究発表講演会 平成 23 年 6 月 1 日 東京	2011
5	服部将朋, 羽田政明, 小澤正邦	名古屋工業大学	セリアアルミナ複合粉末の酸素ストレージ能に及ぼす白金微粒子添加の効果	平成 23 年度粉体粉末冶金協会春季研究発表講演会 平成 23 年 6 月 1 日 東京	2011
6	Masakuni Ozawa, Masaya Amimoto, Masaaki Haneda, Masaya Ito	名古屋工業大学	Oxygen relaxation and structural modification of some rare earth doped zirconia polycrystals	26th Rare Earth Research Conference, June 19-23 SantaFe NM USA	2011
7	Masakuni OZAWA, Takeshi Kimura, Masatomo Hattori, Masaaki Haneda, Ryoji Kato, Masaya Amimoto	名古屋工業大学	Oxygen storage capacity and phase analysis of CeO ₂ -ZrO ₂ catalyst prepared by coprecipitation process	26th Rare Earth Research Conference, June 19-23 SantaFe NM USA	2011
8	小澤正邦, 服部将朋, 羽田政明	名古屋工業大学	白金添加セリアアルミナ触媒の酸素貯蔵能に対する熱処理の影響	日本材料学会第 136 回セラミック材料部門委員会 平成 23 年 7 月 13 日 京都	2011

9	Masakuni Ozawa, Masaaki Haneda, Takeshi Kimura, Masatomo Hattori, Ryoji Kato,	名古屋工 業大学	Oxygen storage capacity and heat stability of ceria- alumina and ceria-zirconia catalysts in H ₂ -TPR	EUROPACAT X Congress Aug.28 - Spet.2, 2011, Glasgow, Scotland	2011
10	Masakuni Ozawa, Akinori Sakamoto, Masaaki Haneda, Masatomo Hattori, Hiroki Yuzuriha	名古屋工 業大学	Oxygen storage capacity and surface composition of ceria zirconia catalyst prepared by precipitation process	14th European Conference on Applications of Surfaces and Interface Analysis, Spet.4-9, 2011, Cardiff, Wales, UK	2011
11	Masakuni Ozawa, Masaaki Haneda, Masatomo Hattori, Kei Hujimoto, Tokuya Watanabe	名古屋工 業大学	The interaction of Pt and CeO ₂ and alumina, XANES analysis and its oxygen storage capacity behavior	14th European Conference on Applications of Surfaces and Interface Analysis, Spet.4-9, 2011, Cardiff, Wales, UK	2011
12	杠 洋輝・丸山兼泰・ 羽田政明・小澤正邦	名古屋工 業大学	セリアジルコニア系複合化触媒 の酸素貯蔵能と VOC 浄化特性	第108回触媒討論会 平成 23 年 9 月 20~22 日(木)北見	2011
13	服部将朋・松田和 恵・羽田政明・小澤 正邦	名古屋工 業大学	アルミナ担持セリア及びセリアジ ルコニアの微細組織と酸素貯蔵 能	第108回触媒討論会 平成 23 年 9 月 20~22 日(木)北見	2011
14	小林克敏、羽田政 明、小澤正邦	名古屋工 業大学	CeO ₂ ナノ粒子担持 ZrO ₂ 複合 触媒の合成と酸素吸蔵能評価	第 55 回日本学術会議材料工学連合 講演会 平成 23 年 10 月 19~21 日 京都	2011
15	神内直人・木村健志・ 羽田政明・小澤正邦	名古屋工 業大学	白金ナノ粒子の CO 酸化活性と 微細構造	第 55 回日本学術会議材料工学連合 講演会 平成 23 年 10 月 19~21 日 京都	2011
16	神内直人・羽田政 明・小澤正邦	名古屋工 業大学	セリア系金属酸化物担持白金 触媒の CO 酸化反応	第 42 回 中部化学関係学協会支部 連合秋季大会 平成 23 年 11 月 5-6 日、長野	2011
17	小林克敏、羽田政 明、小澤正邦	名古屋工 業大学	CeO ₂ -ZrO ₂ 複合微粒子の合成 と触媒活性評価	第 42 回 中部化学関係学協会支部 連合秋季大会 平成 23 年 11 月 5-6 日、長野	2011
18	Masakuni Ozawa	名古屋工 業大学	Nanoparticles for oxygen storage capacity and catalysis for automotive emission control (招待講演)	1st Annual World Congress of Nano- S&T BIT's October 23-26, 2011 Dalian, China	2011
19	Masakuni Ozawa	名古屋工 業大学	Sintering behavior and microstructure of CeO ₂ nanoparticles for heterogeneous catalyst	The 28th Japan-Korea International Seminar on Ceramics, 23-25 Nov. 2011, Okayama	2011
20	Masakuni Ozawa, Hiroki Yuzuriha, Masatomo Hattori, Masaaki Haneda	名古屋工 業大学	Toluene combustion and oxygen storage capacity over modified CeO ₂ -ZrO ₂ catalyst	5th China-Japan Workshop on Environmental Catalysis and Eco- materials, November 28 -29, 2011 Shanghai	2011
21	Hiroki Yuzuriha, Masatomo Hattori Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工 業大学	Oxygen storage capacity and hydrocarbon removal property of zirconia-modified ceria- based catalyst	International Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society, Ecomaterials and Ecoinnovation for Global Sustainability, Nov.28-30, 2011, Osaka	2011
22	Masaya Amimoto, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工 業大学	Phase analysis and optical evaluation of ceria zirconia prepared by coprecipitaion	International Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society, Ecomaterials and Ecoinnovation for Global Sustainability, Nov.28-30, 2011, Osaka	2011
23	Masakuni Ozawa, Masatomo, hattori, Hiroki Yuzuriha, Yuri Miura, Masaaki	名古屋工 業大学	Dispersion state and oxygen storage capacity of nanoparticulate ceria and zirconia supported on alumina	International Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society, Ecomaterials and Ecoinnovation for Global	2011

	Haneda			Sustainability, Nov.28-30, 2011, Osaka	
24	Takahiro Okouchi, Masatomo, hattori, Hiroki Yuzuriha, Yuri Miura, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Oxygen storage capacity and VOC removal property of nanoparticulate ceria and zirconia supported	International Symposium on Materials Science and innovation for Sustainable Society, Ecomaterials and Ecoinnovation for Global Sustainability, Nov.28-30, 2011, Osaka	2011
25	Masakuni Ozawa, Masaaki Haneda	名古屋工業大学	Ceramic catalyst using rare earth containing nanoparticle, OSC components and substrate	International Symposium of EcoTopia Science 2011, December 9-11, 2011, Nagoya	2011
26	Masatomo Hattori, Nicolas.Bion, Daniel Duprez, Takeshi Kimura, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Oxygen storage capacity and oxygen isotope exchange of rare earth modified CeO ₂ and CeO ₂ -ZrO ₂ nanoparticles	International Symposium of EcoTopia Science 2011, December 9-11, 2011, Nagoya	2011
27	Masakuni Ozawa, Masatomo Hattori, Masaaki Haneda, Hiroki Yuzuriha	名古屋工業大学	Oxygen storage capacity and release behavior on the interface of cerium oxide and supported metal oxide	The 6th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology December 11-15, 2011, Tokyo	2011
28	Katsutoshi Kobayashi Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Hydrothermal Synthesis of CeO ₂ Nanocrystals Using Oleate-modified Precipitation Method	The 2nd International Conference on Advanced Material Research, January 7 - 8, 2012, Chengdu. China	2012
29	Kongzhai Li, Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	The synthesis of iron oxides with different phases, exposure crystal planes and their catalytic property for propene oxidation	The 2nd International Conference on Advanced Material Research, January 7 - 8, 2012, Chengdu. China	2012
30	山田祐貴、高橋洋祐、安藤泰典、左合澄人、服部朋俊、羽田政明、小澤正邦	ノリタケカンパニー／名古屋工業大学	自動車触媒の希少元素代替に向けた新規酸素貯蔵能材の開発	第50回セラミックス科学基礎討論会 平成24年1月15-16日 東京	2012
31	高橋洋祐、山田祐貴、安藤泰典、左合澄人、服部知俊、出羽真貴子、羽田政明、小澤正邦	ノリタケカンパニー／名古屋工業大学	希少金属セリウムを低減した自動車排ガス浄化触媒材料の微細構造制御	日本材料学会東海支部第6回学術講演会 平成24年3月5日 名古屋	2012
32	Y.Takahashi, Y.Yamada, Y.Ando, M.Haneda, M.Ozawa	ノリタケカンパニー／名古屋工業大学	XAFS analysis of CeZrO ₂ catalyst for automotive catalyst	International conference of Materials Challenges in Alternative and Renewable Energy 2012, February 26 - March 1, 2012, FL, USA	2012
33	Y.Takahashi, Y.Yamada, Y.Ando, M.Haneda, M.Ozawa	ノリタケカンパニー／名古屋工業大学	XAFS analysis of core shell CeZrO ₂ catalyst for the automotive application	International conference on sustainable energy and environmental science, February 12-13, 2012, Singapore	2012
34	Katsutoshi Kobayashi Masaaki Haneda, Masakuni Ozawa	名古屋工業大学	Preparation of Organics-modified Ceria Nanocrystals with Hydrothermal Treatment	International conference of Materials Challenges in Alternative and Renewable Energy, Feb. 26-Mar. 1, 2012, FL USA	2012
35	澤田洋孝、羽田政明、小澤正邦	名古屋工業大学	酸化セリウム添加ロジウムジルコニア触媒の自動車用模擬3元触媒浄化性能	日本材料学会東海支部第6回学術講演会 平成24年3月5日 名古屋	2012
36	小澤正邦	名古屋工業大学	環境浄化セラミックス (基調講演)	日本材料学会東海支部第6回学術講演会 平成24年3月5日 名古屋	2012
37	杠 洋輝、丸山兼泰、羽田政明、小澤正邦	名古屋工業大学	セリアジルコニア系複合触媒の微細構造とトルエン浄化特性	日本セラミックス協会 2012 年年会、平成24年3月19-21日、京都	2012

38	網本正哉・木村健志・羽田政明・小澤正邦	名古屋工業大学	共沈法合成セリア-ジルコニア系粉末のラマン散乱及び可視分光特性評価	日本セラミックス協会 2012 年年会、平成 24 年 3 月 19-21 日、京都	2012
39	小林克敏、羽田政明、小澤正邦	名古屋工業大学	有機物保護されたセリアナノ結晶の水熱合成	日本化学会 2012 年年会 平成 24 年 3 月 26-29 日 東京	2012
40	小澤正邦ほか	名古屋工業大学／ノリタケ／アドマテックス	排ガス浄化用触媒のセリウム量低減代替技術の開発	元素戦略／希少金属合同シンポジウム 平成 24 年 2 月 29 日 東京	2012

⑩-1B 排ガス浄化向けセリウム使用量低減技術及び代替材料開発／高次構造制御による酸化セリウム機能向上技術および代替材料技術を活用したセリウム使用量低減技術開発

【特許】

なし

【論文】

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、ページ番号	査読	発表年
1	Ken-ichi Shimizu, Kyoichi Sawabe, Atsushi Satsuma	北海道大学	Self-Regenerative Silver Nanocluster Catalyst for CO oxidation	ChemCatChem(3), 1290-1293	有	2011
2	Md. Khorshed Alam, Farouq Ahmed, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Akira Miyamoto	東北大学	Surface Reduction Processes of Cerium Oxide Surfaces by H ₂ Using Ultra Accelerated Quantum Chemical Molecular Dynamic Study	Catalysis Today(164), 9-15	有	2011
3	Farouq Ahmed, Md. Khorshed Alam, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Akira Miyamoto	東北大学	Modeling of Hydrogen Vacancy for Dissociative Adsorption of H ₂ on Pd (111) Surface by A Quantum Chemical Molecular Dynamics	Catalysis Today(164), 16-22	有	2011
4	Farouq Ahmed, Ryo Nagumo, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Akira Endou, Hiromitsu Takaba, Momoji Kubo, Akira Miyamoto	東北大学	Comparison of Reactivity on Step and Terrace Sites of Pd (332) Surface for the Dissociative Adsorption of Hydrogen: A Quantum Chemical Molecular	Applied Surface Science(115), 10503-10513	有	2011
5	Farouq Ahmed, Ryo Nagumo, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Hideyuki Tsuboi, Nozomu Hatakeyama, Hiromitsu Takaba, Akira Miyamoto	東北大学	CO Oxidation and NO Reduction on MgO(100) Supported Pd Cluster: A Quantum Chemical Molecular Dynamics Study	Journal of Physical Chemistry C(115), 24123-24132	有	2011
6	Minori Taguchi , Seiichi Takami , Tadafumi Adschiri , Takayuki Nakane , Koichi Sato and Takashi Naka	東北大学	Simple and rapid synthesis of ZrO ₂ nanoparticles from Zr(OEt) ₄ and Zr(OH) ₄ using a hydrothermal method	Cryst. Eng. Comm.(14), 2117-2123	有	2012
7	Minori Taguchi , Seiichi Takami , Tadafumi Adschiri , Takayuki Nakane , Koichi Sato and Takashi Naka	東北大学	Synthesis of surface-modified monoclinic ZrO ₂ nanoparticles using supercritical water	Cryst. Eng. Comm.(14), 2132-2138	有	2012
8	Atsushi Satsuma, Masatoshi Yanagihara, Junya Ohyama, and Kenichi Shimizu	名古屋大学	Oxidation of CO over Ru/Ceria prepared by Self-dispersion of Ru Metal Powder into Nano-sized Particle	Catalysis Today (in press)	有	2012

【外部発表】

番号	発表媒体	発表タイトル	発表者	ポスター or 口頭	発表年月日
1	E-MES 2011 Spring Meeting	Hydrothermal Synthesis of Cubic Nanoassemblies Comprising Octahedral CeO ₂ Nanocrystals and Hexanedioic Acid	Seiichi Takami, Shunsuke Asahina, Osamu Terasaki, Tadafumi Adschiri	口頭	平成23年5月9日-13日
2	第11回 GSC シンポジウム	超臨界流体を溶媒とした多孔性シリ	清水太一, 大	ポスター	平成23年6

		力担持複合触媒の創製	田昌樹, 佐藤善之, 猪股宏		月2日
3	International Conference on Materials for Advanced Technologies	Supercritical Route for Super Hybrid Nanomaterials	Tadafumi Adschiri	口頭	平成23年6月27日-7月1日
4	Tohoku University G-COE Summer School 2011	Preparation of mesoporous silica-supported cobalt catalysts using supercritical CO2 and application of FT synthesis	Taichi Shimizu, Masaki Ota, Yoshiyuki Sato, Hiroshi Inomata	ポスター	平成23年8月19日
5	Supergreen 2011	Synthesis and Ordered Assembly of Octahedral CeO2 Nanocrystals by Using a Tubular Flow-type Hydrothermal Reactor	Seiichi Takami	口頭	平成23年8月26日-29日
6	第9回宮城化学工学懇話会先端化学発表会	多孔性シリカ複合触媒調製のための超臨界担持法の利用	清水太一, 大田昌樹, 佐藤善之, 猪股宏	口頭	平成23年9月12日
7	化学工学会第43回秋季大会	多孔性シリカ担持複合触媒調製法としての超臨界流体の利用	清水太一, 大田昌樹, 佐藤善之, 猪股宏	口頭	平成23年9月14日
8	第108回触媒討論会	CeO2/Fe2O3系複合体の酸素吸蔵特性	藤井洗明・嶺岸隆行・池上啓太・町田正人	口頭	平成23年9月21日
9	第108回触媒討論会	Dynamical characteristics of Ti doped ceria surface and its catalytic activity	Alam Md.Khorshed	ポスター	平成23年9月22日
10	The 13th European Meeting on Supercritical Fluids	Supercritical CO2 impregnation to prepare highly dispersed metal nano particles/porous support catalyst : Co/mesoporous silica system	Taichi Shimizu, Masaki Ota, Yoshiyuki Sato, Hiroshi Inomata, Masaru Watanabe	ポスター	平成23年10月11日
11	The 9th International Conference on Separation Science and Technology	PREPARATION OF MESOPOROUS SILICA-SUPPORTED FT CATALYSTS USING SUPERCRITICAL FLUIDS	Taichi Shimizu, Masaki Ota, Yoshiyuki Sato, Hiroshi Inomata	ポスター	平成23年11月4日
12	Eighth International Conference on Flow Dynamics	Hydrogen Dissociative Adsorption on Pd(111), Pd(100) and Stepped Pd (332) Surfaces: A Comparative Study of Electronic Structures at Different Coverage	Ahmed Farouq	ポスター	平成23年11月9日
13	第41回石油・石油化学討論会	超臨界担持法によるRh/多孔性シリカ触媒の調製と水素化分解反応への応用	清水太一, 大田昌樹, 佐藤善之, 猪股宏, 中川喜直, 富重圭一	口頭	平成23年11月10日
14	2011年度第11回多元物質科学研究所研究発表会	Preparation of CexZr0.9-xSn0.1O2 solid solutions with enhanced oxygen storage capacity for catalytic application	Qiang Dong, Shu Yin, Tsugio Sato	ポスター	平成23年12月8日
15	第31回表面科学学術講演会	自動車排ガス浄化用自己再生型Agナノクラスター触媒	清水研一	依頼講演	平成23年12月16日
16	The 6th Pure and Applied Chemistry International Conference	Design and Fabrication of Ceria-Based Ceramic Materials for Environmental Cleanup and Human Health	Tsugio Sato, Shu Yin	招待講演	平成24年1月12日
17	セラミックス基礎科学討論会第50回記念大会	Solvothermal synthesis of Ce0.5ZrxSn0.5-xO2 solid solutions with enhanced thermal stability and oxygen storage capacity	Qiang Dong, Shu Yin, Tsugio Sato	口頭	平成24年1月13日

18	平成 23 年度東北大学研究所連携プロジェクト研究成果報告会	Synthesis of CeO ₂ -ZrO ₂ -SnO ₂ solid solutions with enhanced oxygen storage capacity and three-way catalytic performance	Qiang Dong, Shu Yin, Tsugio Sato	ポスター	平成24年3月5日
19	第 109 回触媒討論会	第一原理(ab-initio)計算に基づいた酸素吸蔵を持つセリア・ジルコニア酸化物に関する理論研究	島崎智実・久保百司	ポスター	平成24年3月28日
20	第 109 回触媒討論会	in situ Raman 分光法を用いた Rh/CeO ₂ の酸化還元特性の評価	柳原将俊・大山順也・小田智徳・清水研一・薩摩篤	ポスター	平成24年3月28日
21	第 109 回触媒討論会	希土類酸化物粒子における内部・外部拡散を考慮したメソスケールモデリング	Jung Sunho	ポスター	平成24年3月28日
22	第 109 回触媒討論会	CeO ₂ /遷移金属酸化物ナノ複合体の酸素吸蔵放出特性(1)	上野真奈・尾村武司・藤井光明・日隈聡士・池上啓太・町田正人	ポスター	平成24年3月30日
23	第 109 回触媒討論会	CeO ₂ /遷移金属酸化物ナノ複合体の酸素吸蔵放出特性(2)	尾村武司・上野真奈・藤井光明・日隈聡士・池上啓太・町田正人	ポスター	平成24年3月30日
24	10th International Symposium on Supercritical Fluids	Hydrothermal Carbonization of Glucose in the Presence of Sulfuric Acid	Aya Kato, Haruyuki Kitajima, Masaru Watanabe, Taku Michael Aida and Richard Lee Smith, Jr.	ポスター	平成24年5月14日
25	石油学会第 61 回研究発表会	担持 Pd 触媒上での低温 CO 酸化反応における活性制御因子	薩摩篤・大崎薫・大山順也・清水研一	口頭	平成24年5月25日
26	7th International Conference on Environmental Catalysis	Activity Controlling Factors for Low-Temperature Oxidation of CO over Supported Pd Catalysts	A.Satsuma, K. Osaki, J. Ohyama, K. Shimizu	ポスター	平成24年9月2日 - 6日
27	7th International Conference on Environmental Catalysis	Unique Behavior of Ru on Ceria - Formation of Nano-sized Ru Particles under Oxidative Atmosphere	A.Satsuma, M. Yanagihara, J. Ohyama, K. Shimizu	ポスター	平成24年9月2日 - 6日

【その他の外部発表（プレス発表等）】

平成 23 年 4 月 7 日	日工業新聞	官民でレアメタル代替ー日本ゼオンなど年度内に新技術
平成 23 年 5 月 26 日	河北新報	次世代車の未来探るー東北大で産学官セミナーー
平成 23 年 5 月 26 日	日本経済新聞	レアアース使用抑制ー東北大・トヨタなど共同で研究
平成 23 年 5 月 27 日	日経産業新聞	レアアース抑制研究ー代替素材置き換えも探る
平成 23 年 10 月 18 日	河北新報	車触媒レアアース減へー宮城県産業技術総合センター 新実験機材を導入
平成 24 年 1 月 8 日	河北新報	加速北の拠点（5）ー復興と自動車産業集積

-2 透明電極向けインジウムを代替するグラフェンの開発 / グラフェンの高品質大量合成と
応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発

【特許】9件

番号	出願者	出願番号	国内 外国 PCT	出願日	状態	名称	発明者
----	-----	------	-----------------	-----	----	----	-----

特許リスト内容は非公開原簿に添付する。

【論文】1件、査読中2件、掲載決定1件

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、ページ番号	査読	発表年
1	山田貴壽、石原正統、長谷川雅考、飯島澄男	産総研 /TASC	Large area coating of graphene at low temperature for touch panel applications	Proceedings of 9th International Conference of Coating of Glass and Plastics(2012)p.223	有	2012
2	山田貴壽、石原正統、長谷川雅考、飯島澄男	産総研 /TASC	Large area coating of graphene at low temperature using roll-to-roll microwave plasma chemical vapor deposition	Thin Solid Films (査読中)	有	
3	山田貴壽、金載浩、石原正統、長谷川雅考	産総研 /TASC	Low temperature graphene synthesis by using microwave plasma CVD	Journal of Physics D (査読中)	有	
4	山田貴壽、金載浩、石原正統、長谷川雅考	産総研 /TASC	表面波励起マイクロ波プラズマ CVD 法によるグラフェンのロール to ロール合成	ニューダイヤモンド (2012年10月25日掲載予定)	無	2012

【その他外部発表：新聞報道】1件

番号	発表年月 日	発表媒体	発表タイトル	発表者
1	2012.4.16	化学工業日報(5面)	タッチパネル向け透明電極用材料、グラフェン実用化めざす、大量合成技術開発へ、RtoRも視野	

【その他外部発表：口頭発表】26件、発表予定7件

番号	発表年月 日	発表媒体	発表タイトル	発表者
1	2011.5.25	CNT-NMEMS-TIA 共同シンポジウム	グラフェン研究開発	長谷川雅考
2	2011.6.3	表面技術協会関東支部材料機能ドライプロセス部会	グラフェンの量産と応用	長谷川 雅考, 金 載浩, 石原 正統, 古賀 義紀, 津川 和夫, 飯島 澄男
3	2011.8.8	AIST 計測・診断システム研究協議会 第8回プラズマ技術研究会	マイクロ波プラズマ CVD によるグラフェンの低温大面積合成	長谷川 雅考, 金 載浩, 石原 正統, 古賀 義紀, 津川 和夫, 飯島 澄男
4	2011.8.29	応物シンポジウム ナノカーボン材料の最新動向(3):グラフェンおよびナノチューブ	グラフェンの低温プラズマ成長とその透明電極応用について	長谷川 雅考, 金 載浩, 石原 正統, 山田貴壽, 古賀 義紀, 津川 和夫, 飯島 澄男
5	2011.9.29	The 35 th Annual Conference on MAGNETICS in Japan Symposium "Magnetic and Magneto-transport Properties in Graphene "	Low temperature graphene synthesis by using microwave plasma CVD	長谷川雅考、金 載浩、石原正統、古賀義紀、津川和夫、山田貴壽、飯島澄男
6	2011.10.7	11-2 印刷・情報記録・表示研究会	大面積グラフェンの透明導電膜応用	長谷川 雅考、金載浩、石原正統、山田貴壽、飯島澄男
7	2011.10.1	The 2011 A3 symposium of	Low-temperature and large	長谷川雅考、金 載浩、石原正統、

	3	Emerging Materials	area graphene synthesis by using microwave plasma CVD	山田貴壽、飯島澄男
8	2011.10.13	インテレクチャルカフェ (産業技術総合研究所)	グラフェン透明導電性炭素膜の応用分野	嶋田那由太
9	2011.10.20	Carbon-Based Nano-Materials and Devices	NANOCRYSTALLINE DIAMOND GROWTH IN A SURFACE-WAVE PLASMA	長谷川雅考、津川和夫、石原正統、金載浩、山田貴壽、古賀義紀、飯島澄男
10	2011.10.28	早稲田大学各務記念材料技術研究所オープンセミナー「グラフェン研究の最前線」	グラフェンの大面積成長とディスプレイ応用	長谷川 雅考
11	2011.11.21	第8回 JEITA 電子材料セミナー	グリーンイノベーションに貢献する最先端材料の最新開発動向	佐々木毅
12	2011.11.27	UK-Japan Workshop and Graphene Roadmap Consultation, Graphene Synthesis and Characterisation for application	Low-temperature and large-area graphene synthesis by using microwave plasma CVD	長谷川雅考、金載浩、石原正統、山田貴壽、飯島澄男
13	2012.2.2	第4回産総研ナノシステム連携促進フォーラム	グラフェンプロジェクト：透明電極用グラフェン製造技術の開発	佐々木毅、宮本良之、中西毅
14	2012.2.7	社団法人近畿化学協会機能性色素部会 第80回例会	グラフェンの低温大面積合成と実用化の可能性	長谷川雅考、石原正統、金載浩、山田貴壽、飯島澄男
15	2012.2.15	ナノ炭素材料革命への挑戦	グラフェンシートの革新技術	長谷川雅考
16	2012.2.16	第8回 Clayteam セミナー	グラフェンの低温合成と大量生産の可能性	長谷川雅考、石原正統、金載浩、山田貴壽、飯島澄男
17	2012.2.29	元素戦略 / 希少金属代替	グラフェンの高品質大量合成と	技術研究組合単層CNT融合新材

		材料開発 第6回合同シンポジウム	応用技術を活用した透明電極向けインジウム代替技術の開発	料研究開発機構(TASC) グラフェン事業部(長谷川雅考)
18	2012.3.7	平成23年度産総研本格研究ワークショップ in 東北	透明電極用グラフェン製造技術の開発	佐々木毅
19	2012.3.8	第42回フラーレン・ナノチューブ・グラフェンシンポジウム	Roll-to-roll deposition of graphene film by microwave plasma CVD	山田貴壽、石原正統、長谷川雅考、飯島澄男
20	2012.3.8	ISPlasma 2012	Low-temperature and large-area graphene synthesis by using microwave plasma CVD	長谷川雅考、金載浩、石原正統、山田貴壽、飯島澄男
21	2012.3.16	応用物理学学会	マイクロ波プラズマCVD法によるグラフェンのロール・トゥ・ロール合成	山田貴壽、石原正統、長谷川雅考、飯島澄男
22	2012.3.26	第6回真空紫外光源およびレーザーアブレーションに関するワークショップ	グラフェンプロジェクトにおけるレーザープロセスの研究開発	佐々木毅
23	2012.4.10	Graphene2012	Japanese Graphene Research Activities and Roadmap	長谷川雅考
24	2012.4.13	日本学術振興会炭素材料第117委員会 第301回委員会	水平あるいは垂直配向した透過性黒鉛薄膜の調製	児玉昌也、曾根田靖、吉澤徳子
25	2012.5.8	The eighth International Nanotechnology Conference on Communication and Cooperation	Graphene deposition by roll-to-roll microwave plasma CVD process	山田貴壽、石原正統、長谷川雅考
26	2012.6.28	The International	Large area coating of graphene	山田貴壽、石原正統、長谷川雅考

		Conference on Coating on Glass and Plastic	at low temperature for touch panel applications	
27	2012.9.26 (予定)	表面技術協会第126回 講演大会	プラズマ CVD で合成したグラ フェン透明導電膜の酸処理によ る導電性向上	石原正統、山田貴壽、長谷川雅考
28	2012.9.27 (予定)	表面技術協会第126回 講演大会	プラズマ CVD で合成したグラフ ェン透明導電膜によるタッチパ ネル試作	嶋田那由太、石原正統、山田貴壽、 長谷川雅考
29	2012.11.1 4(予定)	Interfinish 2012	Improvement of electrical conductivity of graphene synthesized by surface-wave plasma chemical vapor deposition by doping with HNO3	石原正統、山田貴壽、長谷川雅考
30	2012.11.1 9(予定)	第26回ダイヤモンドシ ンポジウム	酸処理によるプラズマ CVD グ ラフェンの導電性向上	石原正統、山田貴壽、嶋田那由太、 長谷川雅考
31	2012.11.1 9(予定)	第26回ダイヤモンドシ ンポジウム	スロットアンテナ型マイクロ波 プラズマ CVD 法によるグラフェ ンのロール to ロール合成	山田貴壽、金載浩、石原正統、長 谷川雅考
32	2012.11.1 9(予定)	第26回ダイヤモンドシ ンポジウム	プラズマ CVD グラフェンで試作 したタッチパネルの性能評価	嶋田那由太、石原正統、山田貴壽、 長谷川雅考
33	2012.11.2 6(予定)	MRS 2012 Fall Meeting	A roll-to-roll graphene deposition with 594 mm width by using a slot antenna type microwave plasma CVD toward an industrial mass production	山田貴壽、金載浩、石原正統、長 谷川雅考