



微粒子・粉体の構造制御による材料の特性向上と高機能化

Microstructure Control of Particles and Powders for
High Quality Advanced Materials内藤 牧男¹, 小澤 隆弘²¹大阪大学接合科学研究所 教授²同 助教Makio NAITO¹, Takahiro KOZAWA²¹Professor, Joining and Welding Research Institute, Osaka University, JAPAN²Assistant Professor, Joining and Welding Research Institute, Osaka University, JAPAN

抄 録

粒子集合体である粉体の構造制御は、材料の品質向上のみならず、材料の高機能化にも極めて重要である。そこで本稿では、これらの構造制御の基礎となる二つの事例について具体的に紹介する。まず、粉体を構成する粒子集合体の構造制御においては、不均質構造制御による材料特性向上に向けた取り組みについて紹介する。次に微粒子の構造制御においては、粒子複合化を主とした微粒子の高機能化の事例について説明するとともに、複合粒子集合体としての粉体の構造制御による材料の品質や機能性向上に向けた応用事例を紹介する。

ABSTRACT

Particle microstructure control and its assembly structure control are key issues for achieving high quality advanced materials. In this paper, manufacturing process of advanced ceramics using raw powder materials is discussed to make clear the role of powder structure control for high quality materials. On the other hand, individual particle structure control is also important to develop functional particles and the advanced materials by controlling its assembly structure. In this paper, processing technology of composite particles is introduced to explain the roles for developing advanced materials.

1 はじめに

固体微粒子の集合体である粉体は、先進材料分野においても幅広く活用されている。材料の多くは、その特性が組成だけでなく微細構造によっても大きく影響を受けるため、出発原料として粉体を用いる場合には、材料の製造プロセス、すなわち粉体から

材料が製造されるまでの粉体の構造制御が、目的とする材料の微細構造の制御に不可欠である。図1は、粒子、粉体の構造制御と材料特性との関係について、具体的に示したものである。まず粒子の構造制御は、直接的に材料特性に影響する。その中で最も典型的なものは、粒子の微細化である。粒子のナノサイズ化に伴い、粒子物性はバルクな材料に対して質的に

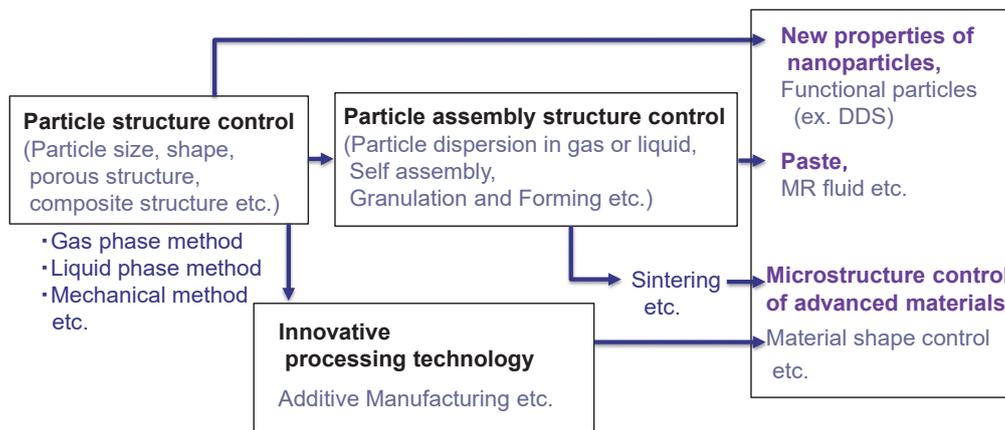


図1 微粒子・粉体の構造制御による材料開発への応用

Fig. 1 Development of advanced materials by structural control of particles and powders.

変化するが、その特異な性質をうまく制御すれば、新材料の創製に期待できる。また、粒子の複合構造を多様に制御することによって、医薬品の薬物送達システム（DDS）に利用するデバイスなど様々な機能性粒子への応用が可能である。

一方、粒子の構造制御に加えて粒子集合体である粉体の構造制御は、粒子の分散構造、造粒体や成形体の構造、さらには焼結体の微細構造を通じて、様々な形態の材料開発に寄与する。近年3Dプリンターなどの革新的な材料製造技術が急速に発展しているが、これらの新技術に対しても、実際には原料として粉体が用いられることが多く、その特性が最終製品の品質に大きく影響するものと思われる。

そこで本稿では、材料の品質向上や高機能化に寄与する粉体の構造制御に着目して、それを実現する上で基礎となる二つの事例について紹介する。まず、粉体を構成する粒子集合体の構造制御に対して、不均質構造制御の重要性を指摘する。ここでは、原料粉体からスラリー、造粒体（顆粒体）、成形体を経て材料を製造するセラミックスの基盤的なプロセスをモデル例として取り上げ、不均質構造制御に着目した粉体の構造形成過程の理解が、材料の品質向上に重要であることを説明する。

次に、粉体を構成する個々の粒子の構造制御に対して、最近幅広い分野で利用されている複合粒子を例として、その構造制御が材料の特性向上と高機能化に果たす役割を説明する。ここでは、環境にやさしい省エネルギー型の粒子複合化プロセスについて紹介するとともに、実際の材料開発への応用事例に

ついても紹介する。以上の二つのアプローチを説明することによって、材料特性向上と高機能化に果たす微粒子・粉体の構造制御の重要性について考えてみたい。

2 粉体の構造制御による材料特性向上へのアプローチ

冒頭述べたように、多くの材料はその組成だけでなく微細構造の影響を大きく受ける。そこで、目的とする材料を開発するためには、出発原料特性だけでなく製造過程における粉体の構造制御が重要になる。しかし、その多くは、これまで製造ノウハウという言葉によってカバーされてきたために、材料特性に粉体の構造形成がどのように寄与しているのかを系統的に知ることは困難であったと思われる。

例えば図2は、セラミックスの代表的な製造プロセスである造粒体の加圧成形による焼結体製造プロセスを示したものである。セラミックスは、粒界を含む微細構造を制御することによって多様な機能を付与できる有望な先進材料である。しかし基本的な技術課題として、強度の信頼性向上や製造コストの低減などが挙げられてきた。これらの問題を解決するためには、まずセラミックスが粒子集合構造に起因する不均質構造を持つという理解が不可欠である。例えば、強度の信頼性は焼結体中に存在する破壊源によって支配されるが、その多くは焼結体中の粗大気孔、あるいは粗大（凝集）粒子に起因する。そして、これらの生成原因は、焼結体を作製する前

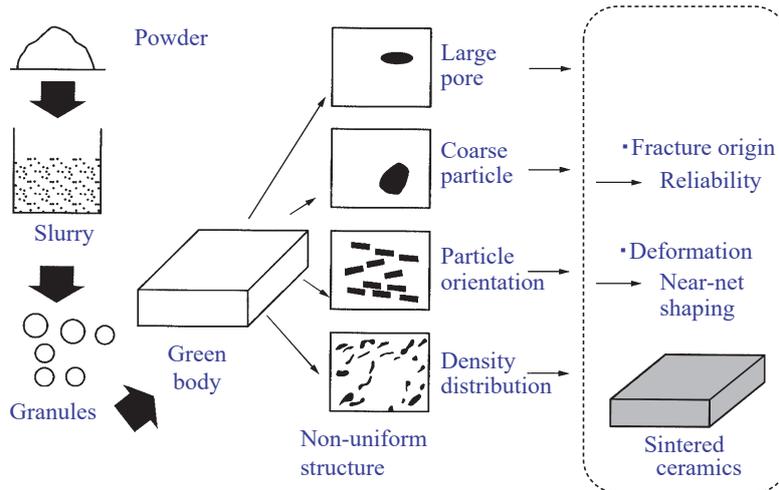


図2 造粒体の加圧成形によるセラミックスの製造プロセス

Fig. 2 Powder granule compaction process to make sintered ceramics.

段階である成形体中に既に存在する。したがって図に見るように、粒子集合体から構成される成形体中に存在する粗大気孔、あるいは粗大粒子の生成を制御することが、セラミックスの信頼性向上につながる。

同様のことは、製造コストに大きく影響する焼結体の形状制御に対しても当てはまる。成形体は、その焼結過程において収縮などの形状変化を生じるが、目的とする形状の焼結体が成形体の焼成によって実現すれば、その後の加工プロセスが大幅に削減されるため、製品の製造コストは格段に低下するものと期待される。それを目指すためには、焼結後に目的とする形状になるように、成形体中の粒子充填構造などを制御することが必要になる。具体的には、図に示すように、成形体中の密度分布や粒子異方性による配向構造などを制御することが必要になるだろう。これらの成形体の不均質構造は、原料粉体からスラリー、造粒体を経て成形体に至るまでの粉体構造形成過程によって決まるため、製造プロセスの各工程において、その構造を評価することが不可欠である。その際に、粗大気孔や粗大粒子の形成に影響する「不均質構造の評価技術」の開発が必要であるが、既に先進セラミックス分野では、体系的な開発が進められ、その一部は標準化されている (Naito et al., 2010)。

以上のことを具体的に説明するために、一つの事例を紹介する。表1は、調製条件をわずかに変えた

表1 アルミナスラリーの調製条件と得られた焼結体の特性
Table 1 Alumina slurry preparing conditions and the properties of the sintered ceramics.

No.	pH	Dispersant Amount [mass%]	Viscosity [mPa·s]	Density [kg/m ³]	Fracture Toughness [MPa·m ^{1/2}]
#1	10	0.2	43	3.91×10^3	3.7
#2	9.1	0.5	22	3.94×10^3	3.8
#3	8.1	2.0	54	3.89×10^3	3.8

三種類のアルミナ粉体のスラリーから図2に示す製造プロセスによって焼結体を作製し、その特性を測定した結果である (Abe et al., 2001)。表から分かるように、スラリーのpHと分散剤濃度を変えることによって、スラリーの見かけ粘度はほぼ一定に調整されている。その結果、噴霧乾燥法によって作製された造粒体のサイズと形状は、ほぼ一定に制御されたため、得られた焼結体の密度と破壊靱性値にも変化は認められなかった。

しかし、図3に示すように、得られた三種類の焼結体の曲げ強さを測定すると、焼結体の強度は明らかに異なることが分かった (Abe et al., 2001)。そこで、その原因を明らかにするために、まず焼結体中の破壊源となる粗大欠陥のサイズと曲げ強度との関係について検討を行った。通常焼結体中に極微量存在する粗大欠陥は、高分解能の電子顕微鏡による焼結体の表面構造観察だけでは統計的な評価が困難

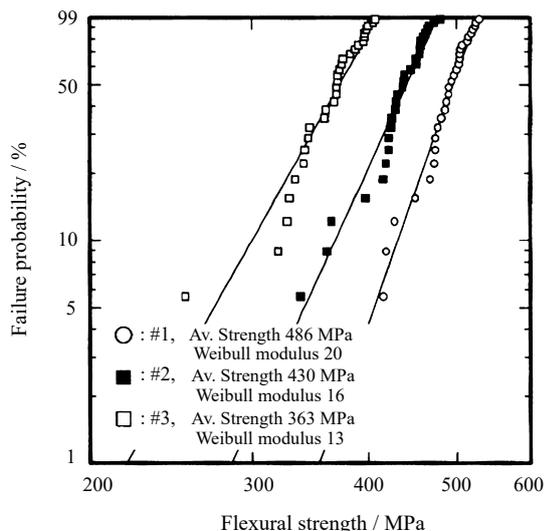


図3 アルミナ焼結体の曲げ強さの測定結果
Fig. 3 Strength distribution of the alumina ceramics.

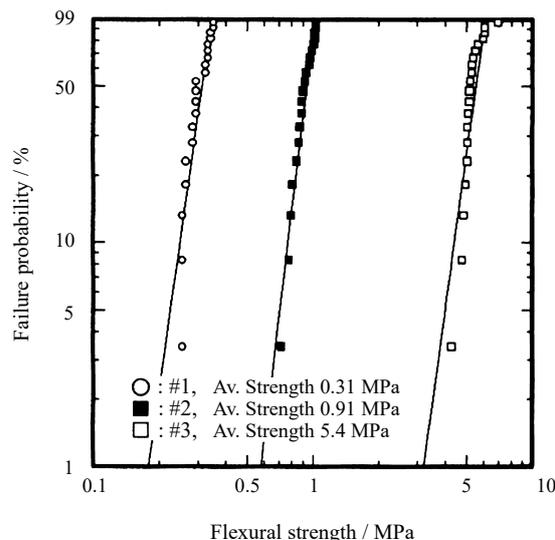


図5 スラリーの調製条件の違いによるアルミナ造粒体の圧縮強度の変化

Fig. 5 Compressive strength distribution of alumina granules associated with different slurry preparing conditions.

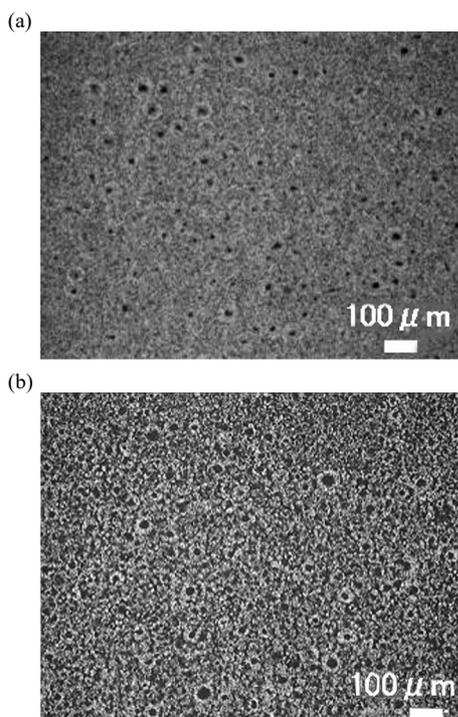


図4 薄片透光法によって観察したアルミナ焼結体の組織構造：(a) スラリー調製条件#1から作製した場合；(b) スラリー調製条件#3から作製した場合

Fig. 4 Microstructures of alumina ceramics observed with optical transparent technique: (a) specimen made from the slurry prepared with #1 condition, (b) specimen made from the slurry prepared with #3 condition.

である。そこで、筆者らが開発した薄片透光法(Hotta et al., 1999)を導入してその検出を行った。焼結体を50 μm程度の薄片にすると、アルミナ焼結体の場合、光学顕微鏡の透過像によって焼結体内部の微量の不均質構造を直接観察することができた。

図4は、この方法によって観察した焼結体中の不均質構造である(Abe et al., 2001)。ここでは二種類の焼結体の結果を示したが、図中の黒いドットが粗大気孔に相当する。この粗大気孔のサイズ分布を統計的に評価し、その違いから両者の強度の違いを推算したところ、図3の強度の実測値の違いを定量的に説明することができた。次に、成形体中の造粒体充填構造を、浸液透光法(Uematsu et al., 1990)によって観察した。この方法は、アルミナ成形体中の粒子間空隙にアルミナとほぼ同じ屈折率の液体を含浸させることで、成形体内部の不均質構造を光学顕微鏡の透過モードで観察するものである。この方法によって成形体中の不均質構造を観察した結果、成形体中の粗大気孔サイズと、焼結体中の粗大気孔サイズとは良い対応関係にあることが分かった。

そこで、最終的に造粒体の特性を評価した結果、図5に見るように、造粒体の圧縮強度がスラリーの調製条件によって変化していることが分かった(Abe et al., 2001)。そして、圧縮強度が大きくなる

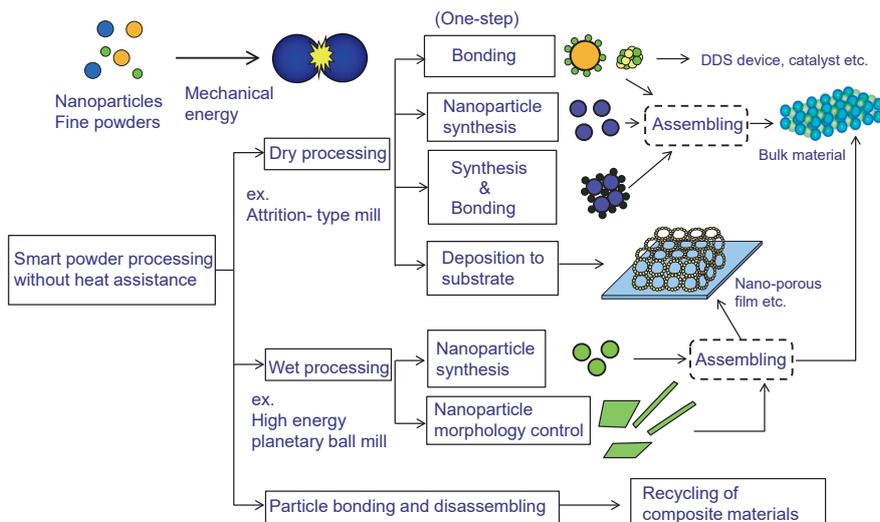


図6 粉碎技術を基礎とした環境にやさしい省エネルギー型の粒子構造制御プロセス (Naito et al., 2021)
 Fig. 6 Smart powder processing developed based on powder grinding technology (Naito et al., 2021).

につれて成形体中に残存する粗大気孔サイズは増大し、その結果焼結体の粗大気孔のサイズも増大することが分かった。そこで、最終的に焼結体の曲げ強度低下の主な原因は、造粒体の圧縮強度の増大によることが明らかにされた。この事実は、その原因が明らかになると当然であると理解されがちであるが、実際には、成形体や焼結体中の不均質な粗大気孔構造を評価できる可視化技術の開発によってはじめて科学的に解明されたものである。

以上は、モデル的な研究事例であるが、実際のプロセスでは、極めて多くの因子がセラミックスの特性に影響しているものと思われる。したがって、以上述べたように、製造プロセスの各段階で現れる造粒体、成形体、焼結体などの特性評価と制御、特に不均質構造の評価とその制御が、セラミックスの特性向上に極めて大事であることが分かる。

3 粒子の構造制御による材料特性向上と高機能化へのアプローチ

3.1 環境にやさしい省エネルギー型の粒子構造制御プロセス

粒子の構造制御には、ビルドアップからブレイクダウン法に至る多様な方法が挙げられる。本稿では一例として、筆者らがこれまで研究開発を進めてき

表2 粒子複合化に使用可能な機械的処理装置 (Naito et al., 2021)

Table 2 Powder processing machines used for particle bonding to make composite particles (Naito et al., 2021).

Type
Impact-type Pin mill, disc mill Centrifugal classifying type
Attrition-type mill
Ball mill
I Tumbling Vibration Planetary Centrifugal fluidizing
Agitated ball mill Mixing vessel type
Jet mill
Mortar
II Cylindrical vessel type with rotating disc Elliptical vessel type with high-speed elliptical rotor

た機械的手法による粒子複合化プロセスを基礎として構築された、「環境にやさしい省エネルギー型の粒子構造制御プロセス」による事例を紹介する。

図6は、粒子構造制御プロセスの全体図を示したものである。このプロセスは、微粉碎機に利用す

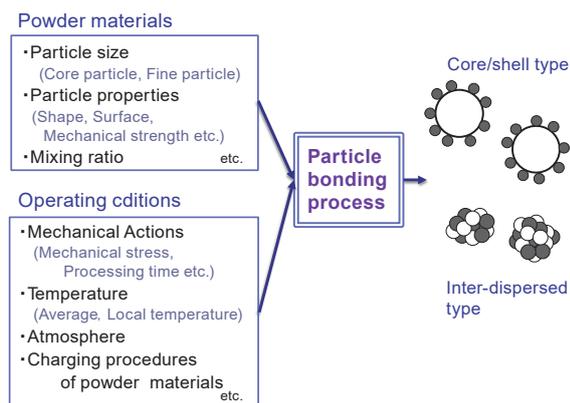


図7 粉体 / 粉体系の粒子複合化プロセスを制御する主要因子 (Naito et al., 2016)

Fig. 7 Factors controlling the particle composition process. (Naito et al., 2016)

る機械的原理を基礎としている。微粒子表面に微粉砕機による強力な機械的エネルギーが作用すると、粒子表面には局所的に高温、高圧などの特異場が形成され、その結果、粒子の接合が引き起こされる。表2のIには、粒子の接合による複合化に使用されたことがある微粉砕機をまとめたが、微粉砕機のほとんどの原理が粒子複合化の機能を持っていることが分かる。また、表のIIにみるように、混合機においても粒子複合化が可能なが分かる。以上の粒子複合化は、図6の乾式プロセスにみるように、気中処理であり、かつ複合化に対して加熱操作を必要とせず、バインダーなども使用しないため、環境にやさしい省エネルギー型のプロセスであると言える。

図7は、粉体 / 粉体系の粒子複合化プロセスを制御する主要因子をまとめたものである (Naito et al., 2016)。粉体プロセスは、一般的に考慮すべき粉体特性が多く、操作条件も複雑であるため、制御する因子も極めて多い。しかし、その中で特に留意すべき因子をまとめてみたのが、図7である。その因子は、図に示すように粉体特性と操作因子に大別される。複合粒子の形態は、粒子表面に異種粒子を接合した被覆型複合粒子と異種粒子から構成された内部分散型複合粒子に大別されるが、これらの粒子は粉体特性と操作因子を考慮することによって自在に設計できる。

なお、筆者らは乾式の粒子複合化プロセスを応用することによって、これまでに図6に見るように、原料粉体からのナノ粒子の非加熱合成プロセス、非

表3 ナノ粒子の合成とその応用事例

Table 3 Examples of synthesized nanoparticles and their applications.

Synthesized nanoparticles	Applications
BaTiO ₃ (Ohara S. et al., 2008)	Dielectric material
LiCoO ₂ (Kondo A. et al., 2014)	Li-ion battery
LiMnPO ₄ (Yoshida J. et al., 2013)	
LiFePO ₄ (Kozawa T. et al., 2014a, 2015)	
LiCoPO ₄ (Matsuoka M. et al., 2017)	
LiNi _{0.5} Mn _{1.5} O ₄ (Kozawa T. et al., 2014b; Kozawa T. and Naito M., 2015)	
La _{0.8} Sr _{0.2} MnO ₃ (LSM) (Chaichanawong J. et al., 2006; Hosokawa K., et al., 2014)	Fuel cell (SOFC)
La _{0.6} Sr _{0.4} Co _{0.2} Fe _{0.8} O ₃ (Xi X. et al., 2015)	
Y _{2.97} Al ₅ O ₁₂ :Ce ³⁺ _{0.03} (Kanai K. et al., 2017)	Phosphor for LED
Li _{6.25} Ga _{0.25} La ₃ Zr ₂ O ₁₂ (Kanai K. et al., 2021)	Solid electrolyte

加熱合成と粒子複合化のワンポット処理による複合粒子の設計プロセス、粒子表面の活性化による基板表面への多孔質膜の非加熱形成プロセスの開発を行った。さらに、液中での微粉砕機に対しても非加熱での粒子プロセスの適用を試み、これまでナノ粒子の非加熱合成や形状制御を実現した。乾式、湿式で作製したこれらの多様な粒子は、さらに集積することによって、材料の微細構造制御が可能になるため、それを利用して多様な材料開発が進められている。なお、粒子複合化の機械的原理をさらに発展させることで、粒子間の界面の分離に適用することも可能である。この原理を利用すれば、難処理複合材料の省エネルギーの新しいリサイクル技術を開発することができる (Naito et al., 2009)。

本稿では紙面の関係上、粒子複合化プロセスによる材料開発への応用に関しては別解説 (Naito et al., 2016, 2021) などを参照頂くこととし、以下、ナノ粒子の非加熱合成プロセス、非加熱合成と粒子複合化のワンポット処理による複合粒子の設計プロセスについての実例を紹介する。さらに、最近研究開発が活発になっている、難処理複合材料の新しいリサイクル技術開発への展開についても紹介を行う。

3.2 粒子の非加熱合成プロセスの応用事例

まず、非加熱でのナノ粒子合成プロセスとその応

用事例について説明する。表3にこれまでに筆者らが合成に成功した事例をまとめて示した。この方法では、合成に必要な原料粉体を予備混合後、摩砕式ミルに投入し、大気中、バッチで一定時間処理を行うだけで目的とするナノ粒子を合成できた。表にみるように、これまでリチウムイオン電池の正極材料を中心に応用が進められている。最近では、高温での熱処理が合成に必要とされるLED用材料(Kanai et al., 2017)や、リチウム系の固体電解質材料の非加熱合成(Kanai et al., 2021)にも応用されている。また、これまでの合成事例は酸化物ナノ粒子のみであったが、現在、酸窒化物や窒化物ナノ粒子の合成についても検討を進めている。

3.3 非加熱合成と粒子複合化によるワンポット処理プロセスの応用事例

筆者らは、これまでリチウムイオン電池の研究開発を進めている研究者、技術者と討論を深める中で、正極の性能向上のために必要とされる粉体の材料設計について検討してきた。図8は、その一つの考え方であり、活物質として LiFePO_4 を例とした場合を示した(Naito et al., 2021; Kozawa et al., 2014a)。まずリチウムイオンの拡散距離減少の観点からは、活物質はできるだけ小さく比表面積も大きい方が望ましい。また、電子伝導性が良好であることも必要

であるため、カーボンなどの導電物質を加えて、活物質集合体中にカーボンのネットワーク構造を形成することが求められる。

しかし、このような条件下では、活物質、カーボンともにいずれもナノサイズの領域であるため、電極を作製する際には粒子同士が凝集してしまい、電極中に高密度の活物質充填構造を形成することは極めて困難である。そこで、これを解決する有効な手段として、これらを造粒して充填性を向上させるとともに、電極内に電解液が浸透可能な適度な空隙構造を形成する必要がある。それが、正極の性能向上

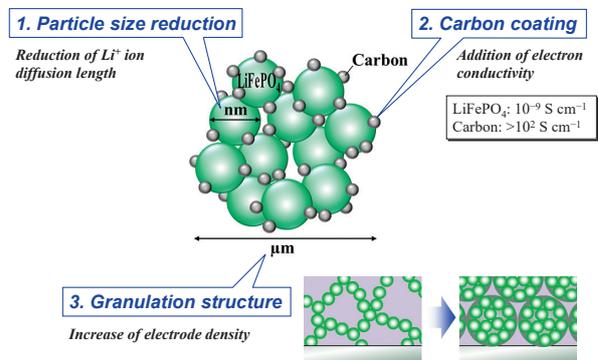


図8 ナノサイズの LiFePO_4 とカーボンから成る LiFePO_4/C 複合造粒体(Naito et al., 2021)

Fig. 8 LiFePO_4/C composite granule consisting of nano-sized LiFePO_4 and carbon. (Naito et al., 2021)

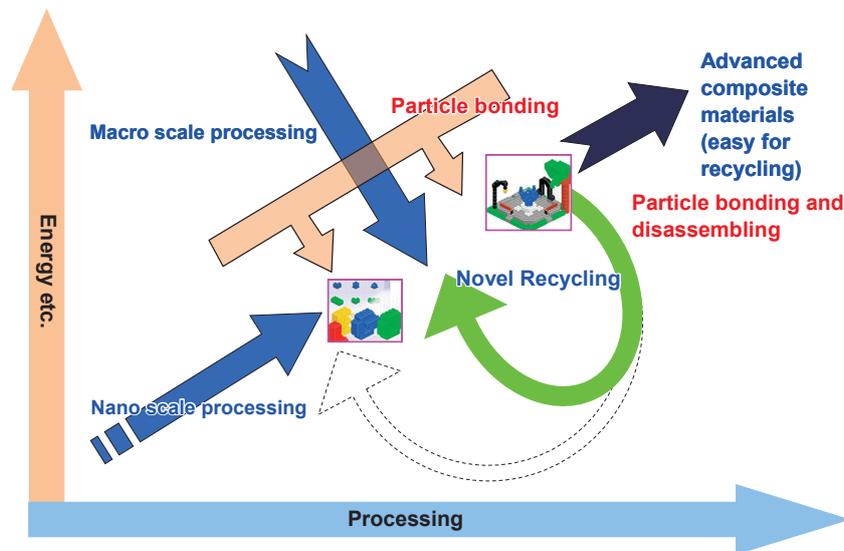


図9 粒子の接合と分離を基礎とした複合材料廃材のリサイクルコンセプト(Naito et al., 2009)

Fig. 9 Concept of smart recycling for waste composite materials based on particle bonding and disassembling process. (Naito et al., 2009).

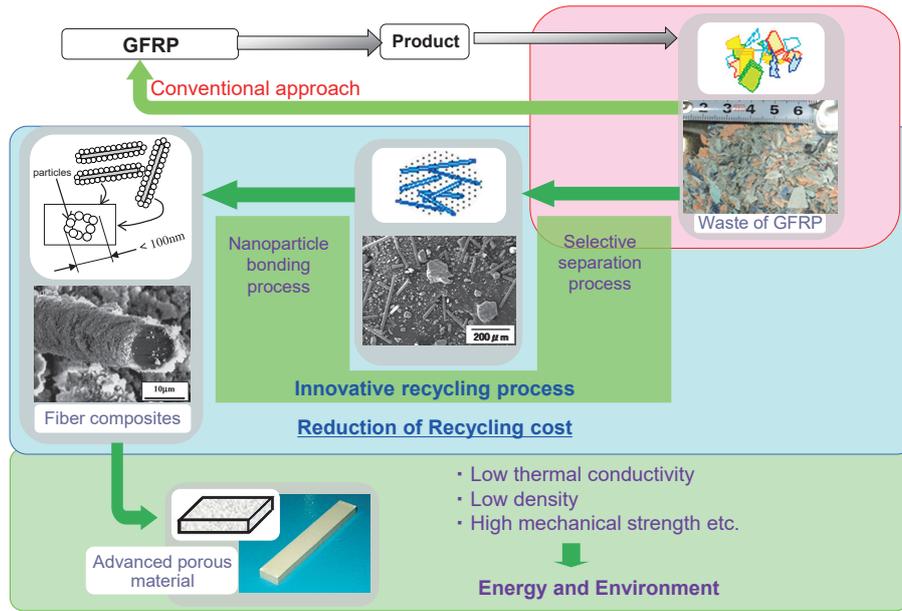


図 10 FRP 廃材の新規リサイクルプロセス (Naito et al., 2009)

Fig. 10 Innovative recycling process of FRP waste proposed by authors. (Naito et al., 2009).

に必要とされる三つ目の条件である。したがって、図 8 に示すナノ粒子複合造粒体が、正極性能向上に有効な前駆体構造になる。しかし、実際にこのような構造を作製するには、高温の熱処理を含む多段の粉体プロセスが不可欠である。

一方、この構造を非加熱のワンポットプロセスで実現できれば、製造コストの格段の低減につながるだけでなく、電極の品質向上にも寄与することが期待される。そこで本プロセスでは、粒子の合成と複合化をワンポットで実現するため LiFePO₄ の原料粉体三種類とカーボンナノ粒子を同時に添加して摩擦式ミルによる処理を行った。その結果、LiFePO₄ 微粒子の合成に加えて、この微粒子とカーボンとが結合して適度な空隙を持つ造粒体を、ワンポットプロセスで容易に作製することに成功した。複合造粒体を用いてコインセルを作製してそのサイクル特性を測定したところ、限られたサイクル回数ではあるが、比較的良好な特性を示した (Kozawa et al., 2015)。

3.4 難処理複合材料の新しいリサイクル技術への展開

これまで私たちは、様々な材料を開発し実用化してきたが、これらの廃棄後のリサイクルが、いま大きな社会問題になっている。今後の持続可能な社会を実現するためには、廃棄物を単に廃棄するのでは

なく、その新しいリサイクルコンセプトを考えることが大事である。具体的には、廃棄物から付加価値の高い新規材料を開発するという発想の転換が必要であろう。この考え方をモデル的に示したのが図 9 である (Naito et al., 2009)。

筆者らは、従来のリサイクルにみられるように、複合材料の廃材に膨大なエネルギーとコストをかけて元の素材に戻すのではなく、その複合構造を有効活用することによって、エネルギー負荷を格段に減らして別の材料を設計する新規のリサイクルを提案した。このことによって、元の素材にまで戻すのに要するエネルギーの格段の低減を行うだけでなく、新たに創製された材料の利用を進めることができる。例えば粒子同士を接合して開発された材料ならば、図 6 で説明したプロセスを適用することによって、接合界面に分離力を与えて両者を分離し、さらにこれらを別の素材と組み合わせることによって、廃材を 100% 利用した新材料を開発することも可能になる。また今後の新規材料開発には、使用後の再利用が容易に行えることを、必須の条件とすることも必要になるとと思われる。

ここでは、リサイクルが極めて困難であると言われる複合材料の代表例としてガラス繊維強化プラスチック (FRP) を取り上げ、その新規リサイクルの取り組みについて紹介する。筆者らが(株) INAX (現

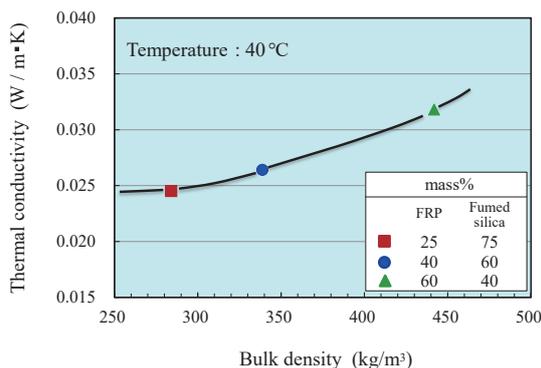


図 11 新規リサイクルプロセス (図 10) によって得られた多孔質成形体の熱伝導率とみかけ密度との関係 (Kondo et al., 2010)

Fig. 11 Thermal conductivity and bulk density of the porous materials fabricated by the recycling process as shown in Fig.10. (Kondo et al., 2010).

在(株) LIXIL) と共同で開発した、浴槽用に使用される FRP 廃材の新規リサイクルプロセスを図 10 に示す (Naito et al., 2009)。FRP 廃材は我が国でも年間約 45 万トン発生するが、そのリサイクルには膨大なエネルギーを要することから、そのほとんどがこれまで焼却や埋め立てによって処理されてきた。そこで筆者らは、図に示すように FRP 廃材を、従来のリサイクルによって元の素材に戻すのではなく、廃材の構造を組み替えて、その全量を利用する新しいプロセスを提案した。

具体的には、まず FRP を構成するガラス繊維とマトリックス樹脂界面に、摩砕式ミルを用いて強力なせん断力を作用させることによって、ガラス繊維の形状を保ったままでマトリックス樹脂から分離する。次に、図 6 で説明した乾式プロセスによる粒子複合化手法によって、ガラス繊維表面に新たにシリカナノ粒子を、図に示すように多孔質状に複合化し、マトリックス樹脂との混合状態のまま加圧成形する。その結果、シリカナノ粒子によって形成されたナノ気孔を多数含み、かつ軽量でガラス繊維によって強度を保持した部材を作製することができる。ここで、ナノ気孔の存在は熱伝導率の大幅な低減に寄与するため、この方法によって、軽量で高性能の断熱材料を作製できる。

図 10 に示すプロセスによって得られた成形体の熱伝導率とみかけ密度との関係を評価した結果を、図 11 に示す (Kondo et al., 2010)。図より室温付近の

熱伝導率は極めて低いことや、成形体の見かけ密度も低いことから、室温付近で使用する超軽量の断熱材料として、建材などへの応用の可能性が考えられる。ここでは一例を示しただけであるが、材料の接合と分離を基礎とした材料の循環利用への展開は、今後の持続可能な社会形成に対して重要な基盤技術になるものと期待される。

4 おわりに

以上本稿では、材料の品質向上や高機能化に寄与する微粒子・粉体の構造制御に着目して、それを実現する上で参考となる二つの事例について紹介した。これらの知見を基礎とし、材料の微細構造を自在に制御することによって、今後新材料開発が活発に展開されることを期待する。

References

- Abe H., Hotta T., Kuroyama T., Yasutomi T., Naito M., Kamiya H., Uematsu K., Variation of microstructure and fracture strength of alumina ceramics made from different slurry preparing condition, *Ceramic Processing Science VI*, *Ceramic Transactions*, 112 (2001) 809–814.
- Chaichanawong J., Sato K., Abe H., Murata K., Fukui T., Charinpanitkul T., Tanthapanichakoon W., Naito M., Formation of strontium-doped lanthanum manganite ($\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$) by mechanical milling without media balls, *Advanced Powder Technology*, 17 (2006) 613–622. <https://doi.org/10.1163/156855206778917751>
- Hosokawa K., Kondo A., Okumiya M., Abe H., Naito M., Synthesis of $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ fine particles by mechanical method, *Journal of the Society of Powder Technology, Japan*, 51 (2014) 4–9. <https://doi.org/10.4164/sptj.51.4>
- Hotta T., Nakahira K., Naito M., Shinohara N., Okumiya M., Uematsu K., Origin of strength change in ceramics associated with the alteration of spray dryer, *Journal of Materials Research*, 14 (1999) 2974–2979. <https://doi.org/10.1557/JMR.1999.0398>
- Kanai K., Fukui Y., Kozawa T., Kondo A., Naito M., Effect of BaF_2 powder addition on the synthesis of YAG phosphor by mechanical method, *Advanced Powder Technology*, 28 (2017) 50–54. <https://doi.org/10.1016/j.appt.2016.07.017>
- Kanai K., Ozawa S., Kozawa T., Naito M., Low temperature synthesis of Ga-doped $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ garnet-type solid electrolyte by mechanical method, *Advanced Powder Technology*, 32 (2021) 3860–3868. <https://doi.org/10.1016/j.appt.2021.08.035>
- Kondo A., Abe H., Isu N., Miura M., Mori A., Ohmura T., Naito M., Development of light weight materials with low

- thermal conductivity by making use of waste FRP, Journal of the Society of Powder Technology, Japan, 47 (2010) 768–772. <https://doi.org/10.4164/sptj.47.768>
- Kondo A., Nakamura E., Kozawa T., Abe H., Naito M., Yoshida J., Nakanishi S., Iba H., One-pot mechanical synthesis of the nanocomposite granule of LiCoO₂ nanoparticles, Advanced Powder Technology, 25 (2014) 1280–1284. <https://doi.org/10.1016/j.apt.2014.03.005>
- Kozawa T., Kataoka N., Kondo A., Nakamura E., Abe H., Naito M., One-step mechanical synthesis of LiFePO₄/C composite granule under ambient atmosphere, Ceramics International, 40 (2014a) 16127–16131. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2014.07.043>
- Kozawa T., Kataoka N., Kondo A., Nakamura E., Abe H., Naito M., Facile preparation of porous LiFePO₄/C composite granules by mechanical process, Materials. Chemistry and Physics., 155 (2015) 246–251. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2015.02.038>
- Kozawa T., Kondo A., Nakamura E., Abe H., Naito M., Koga H., Nakanishi S., Iba H., Rapid synthesis of LiNi_{0.5}Mn_{1.5}O₄ by mechanical process and post-annealing, Materials Letters, 132 (2014b) 218–220. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2014.06.097>
- Kozawa T., Naito M., Facile preparation of core@shell and concentration-gradient spinel particles for Li-ion battery cathode materials, Science and Technology of Advanced Materials, 16 (2015) 015006. <https://doi.org/10.1088/1468-6996/16/1/015006>
- Matsuoka M., Kondo A., Kozawa T., Naito M., Koga H., Saito T., Iba H., Effect of carbon addition on one-step mechanical synthesis of LiCoPO₄/C composite granules and their powder characteristics, Ceramics International, 43 (2017) 938–943. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.10.022>
- Naito M., Abe H., Kondo A., Yokoyama T., Huang C.C., Smart powder processing for advanced materials, KONA Powder and Particle Journal, 27 (2009) 130–143. <https://doi.org/10.14356/kona.2009013>
- Naito M., Kondo A., Chapter 8—Smart Powder Processing for Green Technologies, in: Singh M., Ohji T., Asthana R. (Eds.), Green and Sustainable Manufacturing of Advanced Material, Elsevier, Oxford, 2016, pp 197–222. ISBN:978-0-12-411497-5. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-411497-5.00008-4>
- Naito M., Kozawa T., Kondo A., Huang C.C., Smart powder processing for excellent advanced materials and its applications, KONA Powder and Particle Journal, J-STAGE Advance published online 13 November 2021. <https://doi.org/10.14356/kona.2023001>
- Naito M., Okumiya M., Abe H., Kondo A., Huang C.C., Powder processing issues for high quality advanced ceramics, KONA Powder and Particle Journal, 28 (2010) 143–154. <https://doi.org/10.14356/kona.2010013>
- Ohara S., Kondo A., Shimoda H., Sato K., Abe H., Naito M., Rapid mechanochemical synthesis of fine barium titanate nanoparticles, Materials. Letters., 62 (2008) 2957–2959. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2008.01.083>
- Uematsu K., Kim J. Y., Miyashita M., Uchida N., Saito K., Direct observation of internal structure in spray-dried alumina granules, Journal of the American Ceramic Society, 73 (1990) 2555–2557. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1990.tb07635.x>
- Xi X., Kondo A., Naito M., Simple mechanical process to synthesize La_{0.6}Sr_{0.4}Co_{0.2}Fe_{0.8}O₃ perovskite for solid oxide fuel cells cathode, Materials Letters, 145 (2015) 212–215. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2015.01.116>
- Yoshida J., Nakanishi S., Iba H., Kondo A., Abe H., Naito M., One-step mechanical synthesis of the nanocomposite granule of LiMnPO₄ nanoparticles and carbon, Advanced Powder Technology, 24 (2013) 829–832. <https://doi.org/10.1016/j.apt.2013.01.010>

著者紹介



内藤 牧男 Makio NAITO

〔経歴〕 1980年名古屋大学工学部化学工学科卒，1987年工学博士（名古屋大学）。2002年より大阪大学接合科学研究所教授。2015年～2019年粉体工学会会長，2020年～アメリカセラミックス学会理事など。

〔専門〕 粒子，粉体の構造制御による新材料開発，粉体特性の評価技術の開発。

〔連絡先〕 m-naito@jwri.osaka-u.ac.jp



小澤 隆弘 Takahiro KOZAWA

〔経歴〕 2012年高知大学大学院総合人間自然科学研究科博士課程修了。博士（理学）。日本学術振興会特別研究員（DC2，PD），大阪大学接合科学研究所特任研究員を経て，2014年より同所助教。

〔専門〕 無機材料科学。主に粉体合成プロセスを駆使した粒子の微構造制御に関する研究に従事。

〔連絡先〕 a-kondo@jwri.osaka-u.ac.jp