

令和 3 年 5 月 16 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03392

研究課題名(和文)自己組織化を階層的に利用したナノユニット集積型複合光触媒材料の創成

研究課題名(英文) Development of nanounit-integrated type photocatalytic materials prepared through hierarchical self-organization

研究代表者

片桐 清文 (KATAGIRI, Kiyofumi)

広島大学・先進理工系科学研究科(工)・教授

研究者番号：30432248

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：無機半導体光触媒は光エネルギーを水素エネルギーに変換する材料として期待されているが、現在用いられている光触媒の多くは、植物の光合成システムのように太陽光エネルギーの過半を占める可視光を十分には活用できていない。また、その合成においては、高温での熱処理による手法が一般的であり、ナノスケールでの精緻な設計は困難であった。また、可視光光触媒として有力な金属酸窒化物光触媒の合成は、猛毒であるアンモニアガスを用いる必要があり、それが研究の進展の妨げにもなっている。本研究では、高性能光触媒材料の開発のために、前駆体の分子設計と、安全・安心なプロセスによる新規合成法の開拓を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光触媒となる無機半導体材料は、様々な新規物質が報告されており、非常に高い効率を示すものなども見出されている。しかし、物質そのものの評価が進む一方で、その合成法は従来から用いられてきた原料粉末を高温で焼成する手法から変わっていなかった。そのような背景において、本研究では前駆体となる材料を分子レベルあるいはナノスケールで設計し、それを用いることで合成反応の効率化やより安全かつ安価なプロセスへ転換することが可能なアプローチを提案することができた。その合成過程のメカニズムも明らかにしたことで学術的意義があり、また安全かつ安価なプロセスを提示することは実用化に向けて社会的意義も高いと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Inorganic photocatalysts are expected as materials that convert photoenergy into hydrogen energy. However, most of the photocatalysts currently in use do not fully utilize visible light, which accounts for the majority of solar energy, as in the photosynthetic system of plants. In addition, these photocatalysts are generally prepared by solid-state reactions with heat treatment at high temperatures, making it difficult to design them precisely on a nanoscale. Especially, the synthesis of metal oxynitride photocatalysts, which are promising candidates as visible light photocatalysts, requires the use of ammonia gas, which is extremely harmful, and this has obstructed the progress of research. In this study, we explored the molecular design of precursors and a new synthesis method using a safe and reliable process for the development of high-performance photocatalytic materials.

研究分野：無機材料科学

キーワード：光触媒 金属酸窒化物 水溶性錯体 固体窒素源 自己組織化

## 1. 研究開始当初の背景

地球規模でのエネルギー危機が到来するのは確実視されており、約 60 年後には採掘可能な石油は枯渇すると言われている。そのため、新エネルギーの創出は最優先の研究課題の 1 つである。地球に降り注ぐ太陽光エネルギーは、現在の人類の消費エネルギーの約一万倍におよぶことから次世代エネルギーの本命であることは論を俟たない。太陽光エネルギーを直接電気エネルギーに変換する太陽電池はその有力な候補であるが、太陽光エネルギーは地域、季節、天候、一日の時間帯などによってその強度は大きく変動する。そういった観点などから、太陽光エネルギーを化学エネルギー(物質)として貯蔵し、必要な時に必要な分だけ取り出せる新エネルギー系を構築することは喫緊の課題である。なかでも水素は燃料電池等のクリーンエネルギーとしてのみならず、化学工業における基幹原料として重要である。このような背景において、太陽光エネルギーを用い、水から水素を生成する材料・技術への期待が高まっている。光エネルギーを利用した水素製造が可能な材料・技術として有力なものに無機半導体による光触媒がある。光触媒は酸化チタンのホンダーフジシマ効果[1]に代表されるように我が国が先導的に研究を進め、現在も国際的優位性を有している分野である。酸化チタンについては、その製造技術の開拓から光触媒作用の機構解明までこれまでに数多くの成果が報告されている。酸化チタン以外の無機固体光触媒としては、東京大学の堂免教授らによって、可視光で水を完全分解可能なオキシナイトライド系物質が発見されたほか[2]、水素および酸素生成に活性を示す 2 種類の光触媒をメディアータを介して組み合わせた Z-スキーム型光触媒の開発が進められるなど[3]、様々な取り組みがなされている。しかしながら、新物質探索や新合成法の開発、あるいは新システム構築などの研究が、無機化学者、材料科学者、触媒科学者それぞれが各々の得意な分野に関して個別に注力してきた側面もあり、その合成法は一般的な焼成による固相法が中心であり、前駆体の分子設計などを伴う手法は未開な側面も多々あった。

## 2. 研究の目的

研究代表者は、これまでに無機材料を前駆体となる分子を自己組織化などによる集積化等を利用することで、その結晶多形と形態を制御した合成を行ってきた。例えば、水溶性チタン錯体を合成し、それを高分子電解質を用いた交互積層法でコア粒子上に集積し、コア粒子除去と水熱プロセスによる錯体からの結晶化で中空カプセル形態を有したブルカイト型酸化チタンの合成に世界で初めて成功している(研究分担者富田らとの共同研究)[4]。その他にも研究代表者は水溶性チタン錯体を用いた SrTiO<sub>3</sub> 中空カプセル[5]とナノキューブ[6]、それをメソポーラスシリカと複合化した光触媒[7,8]、WO<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub> コア-シェル複合型光触媒[9]など無機ナノユニットやその複合材料を開発している。このような背景を踏まえ、本研究では、光触媒となる材料について、分子技術を活用した前駆体の調製と、液相プロセスを活用した手法による新規合成法の開発を目的とした。具体的には、可視光応答光触媒として注目を集める金属酸窒化物について、前駆体を液相プロセスで合成し、さらに窒素源に危険なアンモニアガスの代わりに安全な固体窒素源を用いる新手法の開発を行った。また、その窒化過程を明らかにするとともに、窒素源の違いが光触媒活性に及ぼす影響についても、犠牲剤を用いた水分解酸素発生反応によって評価を行った。

## 3. 研究の方法

### (1) 遷移金属水溶性錯体から合成する前駆体と尿素を用いた金属酸窒化物合成法の開拓

遷移金属水溶性錯体はチタンについては、市販のチタン(IV)ビス(アンモニウムラクタト)ジヒドロキシド(TALH)を用い、ニオブについては、ニオブエトシキドの加水分解・重縮合で得られる酸化ニオブゲルを過酸化水素水とアンモニア水に溶解させてペルオキシ錯体とし、その後、乳酸に配位子交換を行って合成した水溶性ニオブ錯体を用いた。

LaTiO<sub>2</sub>N の前駆体となる La<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> と、SrNbO<sub>2</sub>N の前駆体となる Sr<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> は、ともに水熱合成法により合成した。La<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> の合成には、ランタン源に La(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O、チタン源に TALH を用いた。また、Sr<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> の合成には、ストロンチウム源に Sr(OH)<sub>2</sub>・8H<sub>2</sub>O、ニオブ源に水溶性ニオブ錯体を用いた。これらの金属塩と水溶性金属錯体は水溶液中で混合し、さらに 5 M NaOH 水溶液を加えて pH を調整し、反応溶液とした。調製した反応溶液をオートクレーブを用いて 200 °C で 24 時間水熱反応を行い、A<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 型複合酸化物を合成した。得られた La<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> あるいは Sr<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub> と尿素を乳鉢で十分に混合した後、N<sub>2</sub> 雰囲気下で熱処理し、LaTiO<sub>2</sub>N および SrNbO<sub>2</sub>N を合成した。LaTiO<sub>2</sub>N の合成においては、熱処理後に副生した La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を除去するために、得られた試料を塩酸、超純水を用いて洗浄した。得られた試料は、X 線回折(XRD)測定、電子顕微鏡観察などによって評価した。

### (2) Zn-Ga 層状複水酸化物と種々の固体窒素源を用いた GaN:ZnO の合成とその光触媒活性

Zn-Ga 層状複水酸化物(LDH)はそれぞれの硝酸塩を前駆体を用い、共沈法によって合成した[10]。Zn-Ga LDH と固体窒素源(尿素または C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)を混合し、N<sub>2</sub> 気流下で焼成して GaN:ZnO を合成した。比較として、NH<sub>3</sub> と N<sub>2</sub> の混合気流下で Zn-Ga LDH を焼成する従来法でも GaN:ZnO を合成した。合成した 3 種類の GaN:ZnO について、X 線回折(XRD)測定、紫外-可視拡散反射スペクトル(UV-vis DRS)、赤外(IR)分光、X 線光電子分光(XPS)、誘導結合プラズマ(ICP)発光分析等の測定で分析・比較評価した。これら 3 種類の GaN:ZnO に CoO<sub>x</sub> 助触媒を担持し、水中で可視光を照射、生成したガス成分を分析することで光触媒活性を評価した。

#### 4. 研究成果

##### (1) 遷移金属水溶性錯体から合成する前駆体と尿素を用いた金属酸窒化物合成法の開拓 [11]

水熱法で合成した  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  試料には、 $\text{La}(\text{OH})_3$  が副生成物として含まれていることが分かった。そこで、 $\text{La}(\text{OH})_3$  を酸洗浄で除去して単相の  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  とした試料を前駆体として、尿素を窒素源とする  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  の合成を試みたところ、試料の色は変化するものの、XRD 測定によれば  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  が残存したままであり、 $\text{LaTiO}_2\text{N}$  は得られなかった (Fig. 1a)。これに対し、 $\text{La}(\text{OH})_3$  を副生成物として含んだままの  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  試料を尿素を添加して熱処理したところ  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  と  $\text{La}_2\text{O}_3$  が生成した (Fig. 1b)。そこで、 $\text{La}(\text{OH})_3$  を酸洗浄で除去して単相にした  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  に改めて  $\text{La}(\text{OH})_3$  を加えたものを前駆体として尿素による窒化を試みたところ、 $\text{LaTiO}_2\text{N}$  の生成が確認された (Fig. 1c)。したがって、 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  を尿素によって  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  に転換する反応系において、共存する  $\text{La}(\text{OH})_3$  が重要な役割を果たしていると考えられる。 $\text{La}(\text{OH})_3$  を含有した  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  に尿素を加えた試料を  $100\sim 900^\circ\text{C}$  の範囲の様々な温度で熱処理したところ、 $600\sim 900^\circ\text{C}$  において、 $\text{La}_2\text{O}_2\text{CN}_2$  が生成していることが確認された。また、 $\text{La}(\text{OH})_3$  と尿素のみを混合して  $800^\circ\text{C}$  で熱処理すると  $\text{La}_2\text{O}_2\text{CN}_2$  が単相で生成した。さらに、 $\text{La}_2\text{O}_2\text{CN}_2$  と  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  を混合して熱処理した場合でも  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  が生成した。以上の結果より、 $\text{La}(\text{OH})_3$  と尿素から生じる  $\text{La}_2\text{O}_2\text{CN}_2$  が反応中間体として  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  から  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  への窒化に関与していると推測される。次に、 $\text{SrNbO}_2\text{N}$  の合成を試みた。こちらでも水熱合成によって前駆体となる  $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$  を得た (Fig. 2(a))。この場合も副生成物として  $\text{SrCO}_3$  を含んでいた。これに尿素を添加して熱処理することにより  $\text{SrNbO}_2\text{N}$  の合成を試みた。 $\text{SrCO}_3$  を酸洗浄で除去して単相の  $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$  とした場合は、 $\text{SrNbO}_2\text{N}$  を得ることはできなかったが、 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  の場合と同様に、水熱合成後の副生成物を含む試料をそのまま前駆体とし、尿素を窒素源に用いて、諸条件を最適化することで緑色の  $\text{SrNbO}_2\text{N}$  を単相で得ることができた (Fig. 2(b))。この手法では、水溶性金属錯体を用いて水熱合成法によって前駆体となる酸化物を合成するが、その水溶性金属錯体を、各種テンプレートをを用い、自己組織化によって集積化してから水熱反応を行うことで、ロッドやチューブ、中空カプセルなど様々な形態を有した酸化物が得られる [4]。それによって得られた酸化物を固体窒素源に尿素を用いて酸窒化物に転換することで、様々な形態を有した金属酸窒化物合成が可能である。これはすなわち、Z スキーム型複合光触媒を構築する場合などにおいても、酸素発生光触媒と水素発生光触媒を効率的に連携させる形態にそれぞれ制御して合成することなどにもこの知見が活用できると考えられる。

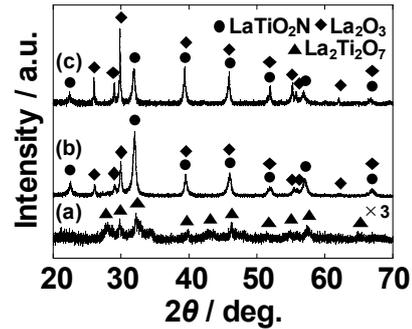


Fig. 1. XRD patterns of samples obtained after heat-treatment ( $930^\circ\text{C}$ ) of (a)  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  and urea, (b) products obtained from the hydrothermal method and urea, and (c)  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ,  $\text{La}(\text{OH})_3$  and urea.

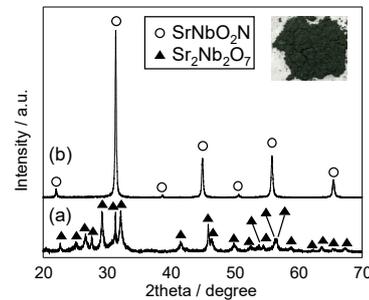


Fig. 2. XRD patterns of (a)  $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$  synthesized by the hydrothermal method, (b)  $\text{SrNbO}_2\text{N}$  obtained after nitridation using urea.

##### (2) Zn-Ga 層状複水酸化物と種々の固体窒素源を用いた GaN:ZnO の合成とその光触媒活性

固体窒素源を用いた  $\text{GaN:ZnO}$  の形成プロセスを追跡するため、各温度で焼成した試料の XRD 測定を行った (Fig. 3)。尿素を用いた場合、 $200^\circ\text{C}$  付近で尿素的分解とともに非晶質の  $\text{Zn}(\text{CN}_2)$  様化合物が形成し、これが高温で分解・反応し  $\text{GaN:ZnO}$  を形成する。この系では結晶性の  $\text{Zn}(\text{CN}_2)$  の生成は一部にとどまっていた。一方、 $\text{C}_3\text{N}_4$  を用いた  $\text{GaN:ZnO}$  の合成でも同様に  $\text{Zn}(\text{CN}_2)$  を経由するが、非晶質の中間体の形成は見られず、 $600^\circ\text{C}$  付近で結晶性の  $\text{Zn}(\text{CN}_2)$  を形成していた。このように窒化経路は異なるものの、 $800^\circ\text{C}$  で熱処理した試料は窒化源によらず、すべてウルツ鉱型の  $\text{GaN:ZnO}$  単相の XRD パターンを示した。しかし、 $ab$  軸方向の間隔は  $\text{C}_3\text{N}_4$ 、尿素、 $\text{NH}_3$  ガスの順で小さく、 $\text{Zn/Ga}$  比のずれが予想される。これは用いる窒素源によって焼成中の  $\text{Zn}$  成分の揮発の割合が異なることに起因すると考える。UV-vis DRS から求めたバンドギャップ

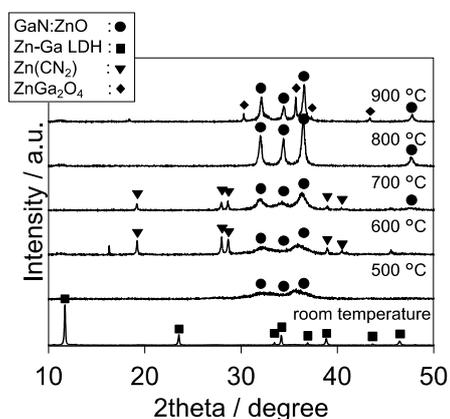


Fig. 3. XRD patterns of powders obtained from mixture of Zn-Ga LDH and  $\text{C}_3\text{N}_4$  after heat treatment at  $500\sim 900^\circ\text{C}$ .

は  $\text{NH}_3$  系で 2.39 eV、尿素系で 2.34 eV、 $\text{C}_3\text{N}_4$  系で 2.36 eV と大きな差はなかった。次に、各種窒素源を用いて合成した GaN:ZnO の  $^{71}\text{Ga}$  固体 NMR 測定を行ったところ、窒素源の違いによってスペクトルに明確な違いが認められ、それぞれの GaN:ZnO の微細構造に差異が生じていることが示唆された。そこで、犠牲剤として Ag イオンを加えた水中で  $\text{O}_2$  生成半反応の光触媒活性を測定した (Fig. 4)。光照射 1 h 後までの初期活性は、3 種類の GaN:ZnO で大きく異なり、 $\text{C}_3\text{N}_4$ 、尿素、 $\text{NH}_3$  ガスの順で  $\text{O}_2$  生成量が多かった。一方で 3.5–5 h の直線性が高い部分から定常活性を算出すると、 $\text{C}_3\text{N}_4$  系では  $9.68 \mu\text{mol/h}$ 、尿素系で  $6.97 \mu\text{mol/h}$ 、 $\text{NH}_3$  系で  $7.03 \mu\text{mol/h}$  であった。以上より、合成に用いる窒素源の種類が生成する酸窒化物およびその光触媒初期活性に影響を与えることを明らかにした。

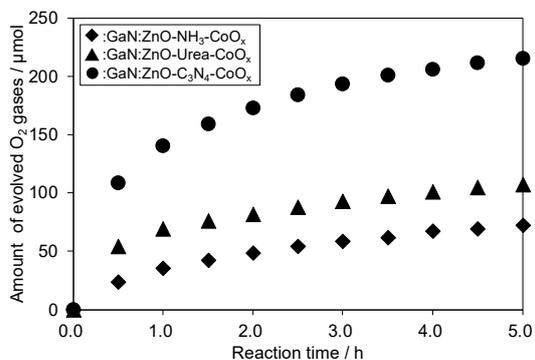


Fig. 4. Time course of  $\text{O}_2$  evolution under visible light irradiation ( $\lambda > 400 \text{ nm}$ ) by synthesized  $\text{CoO}_x$ -loaded GaN:ZnO.

#### <引用文献>

- [1] A. Fujishima and K. Honda, *Nature*, **238**, 37–38 (1972).
- [2] K. Maeda, T. Takata, M. Hara, N. Saito, Y. Inoue, H. Kobayashi, and K. Domen, *J. Am. Chem. Soc.*, **127**, 8286–8288 (2005).
- [3] A. Kudo, S. Yoshino, T. Tsuchiya, Y. Udagawa, Y. Takahashi, M. Yamaguchi, I. Ogasawara, H. Matsumoto, and A. Iwase, *Faraday Discuss.*, **215**, 313–328 (2019).
- [4] K. Katagiri, H. Inami, K. Koumoto, K. Inumaru, K. Tomita, M. Kobayashi, and M. Kakihana, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2012**, 3267–3272 (2012).
- [5] K. Katagiri, J. Kamiya, K. Koumoto, and K. Inumaru, *J. Sol-Gel Sci. and Technol.*, **63**, 366–372 (2012).
- [6] K. Fujinami, K. Katagiri, J. Kamiya, T. Hamanaka, and K. Koumoto, *Nanoscale*, **2**, 2080–2083 (2010).
- [7] K. Katagiri, Y. Miyoshi, K. Inumaru, *J. Colloid Interface Sci.*, **407**, 282–286 (2013).
- [8] T. Ohashi, Y. Miyoshi, K. Katagiri, and K. Inumaru, *J. Asian Ceram. Soc.*, **5**, 255–260 (2017).
- [9] T. Ohashi, T. Sugimoto, K. Sako, S. Hayakawa, K. Katagiri, and K. Inumaru, *Catal. Sci. Technol.*, **5**, 1163–1168 (2015).
- [10] K. Katagiri, Y. Hayashi, R. Yoshiyuki, K. Inumaru, T. Uchiyama, N. Nagata, Y. Uchimoto, A. Miyoshi, and K. Maeda, *Inorg. Chem.*, **57**, 13953–13962 (2018).
- [11] R. Okada, K. Katagiri, Y. Masubuchi, K. Inumaru, *Eur. J. Inorg. Chem.*, **2019**, 1257–1264 (2019).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Katagiri Kiyofumi, Hayashi Yuki, Yoshiyuki Risa, Inumaru Kei, Uchiyama Tomoki, Nagata Noriyuki, Uchimoto Yoshiharu, Miyoshi Akinobu, Maeda Kazuhiko	4. 巻 57
2. 論文標題 Mechanistic Insight on the Formation of GaN:ZnO Solid Solution from Zn-Ga Layered Double Hydroxide Using Urea as the Nitriding Agent	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 13953 ~ 13962
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b02498	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Okada Ryoki, Katagiri Kiyofumi, Masubuchi Yuji, Inumaru Kei	4. 巻 2019
2. 論文標題 Preparation of LaTiO <sub>2</sub> N Using Hydrothermally Synthesized La <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub> as a Precursor and Urea as a Nitriding Agent	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 European Journal of Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 1257 ~ 1264
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejic.201801526	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Inumaru Kei, Katagiri Kiyofumi	4. 巻 25
2. 論文標題 Chemical Functions of Nanocomposite Materials Formed with Photocatalyst Particles Surrounded by Mesoporous Silica	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the Society of Inorganic Materials, Japan	6. 最初と最後の頁 156 ~ 161
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shahiduzzaman Md., Ashikawa Hiroto, Kuniyoshi Mizuki, Visal Sem, Sakakibara Seiya, Kaneko Tetsuya, Katsumata Tetsuhiro, Taima Tetsuya, Iwamori Satoru, Isomura Masao, Tomita Koji	4. 巻 6
2. 論文標題 Compact TiO <sub>2</sub> /Anatase TiO <sub>2</sub> Single-Crystalline Nanoparticle Electron-Transport Bilayer for Efficient Planar Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 12070 ~ 12078
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.8b02406	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shahiduzzaman Md., Visal Sem, Kuniyoshi Mizuki, Kaneko Tetsuya, Umezu Shinjiro, Katsumata Tetsuhiro, Iwamori Satoru, Kakahana Masato, Taima Tetsuya, Isomura Masao, Tomita Koji	4. 巻 19
2. 論文標題 Low-Temperature-Processed Brookite-Based TiO <sub>2</sub> Heterophase Junction Enhances Performance of Planar Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 598 ~ 604
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.8b04744	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katagiri Kiyofumi, Narahara Masaya, Sako Kaori, Inumaru Kei	4. 巻 84
2. 論文標題 SiO <sub>2</sub> shell formation mechanism and enlargement on hydrophobized nanoparticles via a reverse microemulsion process	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Sol-Gel Science and Technology	6. 最初と最後の頁 110 ~ 117
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10971-017-4479-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohashi Tomomi, Miyoshi Yuki, Katagiri Kiyofumi, Inumaru Kei	4. 巻 5
2. 論文標題 Photocatalytic reduction of carbon dioxide by strontium titanate nanocube-dispersed mesoporous silica	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Asian Ceramic Societies	6. 最初と最後の頁 255 ~ 260
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jascer.2017.04.008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計31件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 吉行 里紗, 林 優樹, 片桐 清文, 犬丸 啓, 徳留 靖明
2. 発表標題 Zn-Ga 層状複水酸化物ナノ結晶の液相合成とGaN:ZnO固溶体への転換
3. 学会等名 日本ゾル - ゲル学会第16回討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 片上 裕太, 林 優樹, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 固体窒素源を用いた金属酸窒化物の新規合成プロセスの開発
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第31回秋季シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 國吉望月, Shahiduzzaman Md, 磯村雅夫, 片桐清文, 小林 亮, 垣花真人, 富田 恒之
2. 発表標題 ペロブスカイト型太陽電池の電子輸送層のためのTiO <sub>2</sub> ナノ粒子の水熱合成
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第31回秋季シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 片桐 清文
2. 発表標題 無機微粒子を元素ブロックとする機能性材料の創出
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第31回秋季シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 片桐清文, 林 優樹, 岡田凌輝, 犬丸 啓
2. 発表標題 尿素を窒素源として用いた金属酸化物および水酸化物の酸窒化物への転換法の開発
3. 学会等名 第67回高分子討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 定森早紀, 國崎佑介, 片桐清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 酸化チタン光触媒の有機物分解選択性に及ぼすシリカ被覆の効果と有機修飾による機能化
3. 学会等名 第122回触媒討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 岡田凌輝, 片桐清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 尿素を固体窒素源として用いたSrNbO <sub>2</sub> Nの合成
3. 学会等名 第25回ヤングセラミスト・ミーティング in 中四国
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉行里紗, 林 優樹, 片桐清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 層状複水酸化物と尿素を用いたGaN:ZnO合成における窒化メカニズムの解明と形態制御
3. 学会等名 第25回ヤングセラミスト・ミーティング in 中四国
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 岡田凌輝, 片桐清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 固体窒素源として尿素を用いたペロブスカイト型酸窒化物SrTaO <sub>2</sub> Nの合成
3. 学会等名 第57回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片上裕太, 片桐清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 CaCN <sub>2</sub> を窒素源とする金属酸窒化物合成法の開発
3. 学会等名 第57回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤井侑樹, 林 優樹, 片桐清文, 犬丸 啓, 鱒淵友治, 木下誠志, 野田泰斗, 三好亮暢, 前田和彦
2. 発表標題 種々の固体窒素源を用いた GaN:ZnO の合成とキャラクタリゼーション
3. 学会等名 日本セラミックス協会2019年年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 定森早紀, 國崎佑介, 片桐清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 メソポーラスシリカ包含TiO <sub>2</sub> 粒子の光触媒活性に与える有機物吸着能の効果
3. 学会等名 日本セラミックス協会2019年年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 林 優樹, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 層状複水酸化物を前駆体とするGaN:ZnO固溶体酸窒化物の新規合成法の開拓
3. 学会等名 第2回 公開シンポジウム 複合アニオン化合物の創製と新機能
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 岡田 凌輝, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 La <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub> の水熱法による合成と尿素を用いたLaTiO <sub>2</sub> N への転換
3. 学会等名 第2回 公開シンポジウム 複合アニオン化合物の創製と新機能
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 岡田 凌輝, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 尿素と水溶性金属錯体を前駆体に用いたペロブスカイト型酸窒化物の合成
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第30回秋季シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kiyofumi Katagiri
2. 発表標題 Novel Preparation Procedure of Oxynitride Photocatalysts for Solar Hydrogen Production via Water Splitting
3. 学会等名 MIRAI seminar: Including Large-Scale Research Facilities and their Potential for Research and Society (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 林 優樹, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 層状複水酸化物と尿素を前駆体とした (Ga <sub>1-x</sub> Zn <sub>x</sub> )(N <sub>1-x</sub> O <sub>x</sub> )の合成とキャラクタリゼーション
3. 学会等名 第7回CSJ化学フェスタ
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 岡田 凌輝, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 水溶性チタン錯体を用いたLa <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub> の水熱合成と尿素を用いたLaTiO <sub>2</sub> Nへの転換
3. 学会等名 第7回CSJ化学フェスタ
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yuki Hayashi, Kiyofumi Katagiri, Kei Inumaru
2. 発表標題 Synthesis and characterization of homogeneous (Ga <sub>1-x</sub> Zn <sub>x</sub> ) (N <sub>1-x</sub> O <sub>x</sub> ) using layered double hydroxides and urea as precursors
3. 学会等名 The 34th International Japan-Korea Seminar on Ceramics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 岡田 凌輝, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 窒素源として尿素を前駆体に用いたLaTiO <sub>2</sub> Nの合成
3. 学会等名 第24回ヤングセラミスト・ミーティングin中四国
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 林 優樹, 片桐 清文, 犬丸 啓
2. 発表標題 層状複水酸化物を前駆体とした高品質Ga <sub>1-x</sub> N <sub>x</sub> :ZnO固溶体酸窒化物の合成
3. 学会等名 第24回ヤングセラミスト・ミーティングin中四国
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 岡田 凌輝, 片桐 清文, 犬丸 啓, 定 尚樹, 大瀧 壮太, 鱒淵 友治
2. 発表標題 尿素を用いたLa <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub> からLaTiO <sub>2</sub> Nへの窒化反応のメカニズムの解析
3. 学会等名 日本セラミックス協会 2018年年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉行 里紗, 林 優樹, 片桐 清文, 犬丸 啓, 徳留 靖明
2. 発表標題 Zn-Ga 層状複水酸化物ナノ結晶の合成と尿素を用いたGaN:ZnOへの転換
3. 学会等名 日本セラミックス協会 2018年年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 國吉 望月, 富田 恒之, 朝倉 裕介, 殷 シュウ, 小林 亮, 加藤 英樹, 垣花 真人, 西田 尚敬, 後藤 知代, 関野 徹
2. 発表標題 Brookite及びBronze型TiO <sub>2</sub> 光触媒の水熱合成とその物性評価
3. 学会等名 日本セラミックス協会第30回秋季シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 國吉望月、富田恒之、朝倉裕介、殷シュウ、小林 亮、加藤英樹、垣花真人、西田尚敬、後藤知代、関野 徹
2. 発表標題 Bronze型TiO <sub>2</sub> 光触媒の水熱合成とその物性評価
3. 学会等名 第7回CSJ化学フェスタ
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Mizuki Kuniyoshi, Koji Tomita, Ken-ichi Katsumata
2. 発表標題 Photocatalytic and Photoelectrode Properties of Four TiO <sub>2</sub> Polymorphs; Anatase, Rutile, Brookite, Bronze
3. 学会等名 The 2nd International Symposium on Recent Progress of Energy and Environmental Photocatalysis (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 國吉望月、藤代義正、安江祥慶、Md. Shahiduzzaman、勝又哲裕、金子哲也、磯村雅夫、岩森暁、梅津信二郎、小林亮、垣花真人、富田恒之
2. 発表標題 水溶性チタン錯体を用いた有機無機ハイブリッド太陽電池のTiO <sub>2</sub> 電極の作製
3. 学会等名 日本セラミックス協会2018年年会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 片桐 清文 (監修: 幸塚広光)	4. 発行年 2017年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 416(うち11ページ担当)
3. 書名 ゾル-ゲルテクノロジーの最新動向	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	富田 恒之  (TOMITA Koji)  (00419235)	東海大学・理学部・准教授   (32644)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------