# 科研費

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 1 5 日現在

機関番号: 13701

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2017~2019

課題番号: 17K06014

研究課題名(和文)ボトムアップ合成した金属酸ナノシートの有機化合物とのハイブリッド化による機能化

研究課題名(英文)Functionalization of metalate nanosheets synthesized by bottom-up processes through the hybridization with organic compounds

#### 研究代表者

伴 隆幸(BAN, Takayuki)

岐阜大学・工学部・教授

研究者番号:70273125

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文): 二次元ナノ材料である金属酸ナノシートのボトムアップ合成をこれまでに見出している。この方法で合成したものは従来の方法で合成されるものとはいくつか異なる特長をもつ。本研究では、有機物とのハイブリッド化をとおして、その特長を有効に活用する応用を探索した。例えば、面内サイズが小さいという特長を活かすために、チタン酸ナノシートの縁の部分に有機配位子を吸着させて、その有機配位子からナノシートへの電子の光励起を利用した光触媒を作製した。このように、有機物のハイブリッド化がボトムアップ合成した金属酸ナノシートの特長を活かす重要な手段であることが確かめられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義 ナノ構造は大きなバルク体とは異なる興味深い特性を示すことが多々ある。我々はナノ材料の新しい合成法を見出した。その方法で合成したものは、同じナノ材料でも、従来の手法で合成したものとは異なる特長を有している。そこで、その特長を有効に活用した応用を探索することを目的として研究を行った。この研究では、その材料単独で用いるのではなく、有機物と複合化することで、その特長を活かすことができるのではないかと考えて検討をおこなった。その結果、そのような複合化で興味深い特性が引き出せることが分かってきた。

研究成果の概要(英文): Metalate nanosheets are two-dimensional materials with highly anisotropic shapes. Until now, we reported a novel synthetic method of metalate nanosheets, that is, the bottom-up synthesis by aqueous solution process. The metalate nanosheets synthesized by this method have unique features, compared to the ones synthesized by the conventional method. In this study, the hybridization of the metalate nanosheets with organic species was investigated in order to utilize the unique features. Specifically, the titanate nanosheets, on which organic ligands were adsorbed, provided intriguing photocatalytic properties. Thus, the hybridization with organic species can play an important role in educing the potential of the metalate nanosheets synthesized by the bottom-up synthesis.

研究分野: 無機材料化学

キーワード: ナノ材料 溶液化学 ゾル-ゲル法 有機・無機ハイブリッド材料 ボトムアップ合成 薄膜

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

## 様 式 C-19、F-19-1、Z-19(共通)

### 1.研究開始当初の背景

金属酸ナノシートは、約1 nm の厚さをもつ二次元ナノ材料であり、その高い構造異方性による興味深い特性が期待される材料である。従来は、2 段階のイオン交換反応を利用したインターカレーションにより、層間に嵩高い有機陽イオンをもつ層状金属酸塩を合成し、その層状金属酸塩の水溶液中での膨潤と層剥離を利用して調製されてきた。一方、我々は、層間に嵩高い有機陽イオンをもつ層状金属酸塩を、化学反応を利用して合成する、ボトムアップ法による金属酸ナノシートの合成法を見出した。この方法で合成した金属酸ナノシートは、従来の方法で合成した金属酸ナノシートは、従来の方法で合成した金成されるため、透明な金属酸ナノシート水系ゾルが容易に調製できる。また、ボトムアップ法では多くの場合、室温でも金属酸ナノシートが合成できる。それは大きな利点であるが、結晶生成速度が非常に速いために、生成するナノシートの面内サイズが非常に小さくなる。つまり、二次元構造をもっているものの、ナノシートひとつひとつの構造異方性は小さくなってしまう。しかし、その小さい形態という特長を活かした応用を見出すことができれば、ボトムアップ法で合成したナノシート独自の応用展開が可能となる。そこで、ボトムアップ法で合成した金属酸ナノシートのいくつかの特長を有効に活用した応用を見出すことを検討することとした。

#### 2.研究の目的

## (1) 有機配位子で化学修飾した金属酸ナノシートの可視光応答型光触媒への応用

ボトムアップ法で合成した金属酸ナノシートの特長の一つに、面内サイズが小さいということがある。つまり、表面積に対する縁の長さの比が大きい。ダングリングボンドがナノシートの表面にはなく、縁の部分にあることより、ダングリングボンドを使って、有機配位子などをナノシートに吸着させた有機・無機ハイブリッドナノ構造を構築して応用できれば、ボトムアップ法で合成した金属酸ナノシートの特長を活かしたものになると考えた。本研究では、チタン酸ナノシートを有機配位子とハイブリッド化して可視光応答型光触媒へ応用することを検討した。

## (2) ゾルゲル法による有機・無機ハイブリッド薄膜の作製

ボトムアップ合成した金属酸ナノシートのもう一つの特長として、水に高い分散性を示すことがある。イオン交換の場合とは異なり、ゾル中に余分なアルカリ金属イオンなどが存在しないため、凝析などによる沈殿の生成が起こりにくい。よって、面内サイズが小さいこともあり、透明性の高い水系ゾルが調製できる。つまり、ゾルゲル法による薄膜作製用のコーティングゾルとして用いることもできる。その場合、金属酸ナノシートが積層した、層間に有機陽イオンをもつ層状金属酸塩の高配向薄膜が容易に作製できる。また、層間の有機陽イオンはイオン交換が可能なため、様々な高配向性有機・無機ハイブリッド薄膜が作製できる可能性もある。ここでは、ゾルゲルコーティングに適した金属酸ナノシートゾルの調製や、作製された薄膜の光学的な異方性について調べることとした。

### (3) 様々な金属酸ナノシートのボトムアップ合成

有機物とのハイブリッド化とは直接は関係ないものの、ハイブリッド材料の様々な応用を検討するうえで、それぞれの応用に適した金属酸ナノシートが必要となる。例えば、ペロプスカイト化合物は様々な機能をもつので、それらが層構造となった層状ペロブスカイトが層剥離したナノシートの合成は興味深い。また、これまでは、絶縁性の金属酸ナノシートの合成を検討してきたが、金属性をもった金属酸ナノシートがボトムアップ法により合成できないかも検討する。

#### 3.研究の方法

### (1) 有機配位子で化学修飾した金属酸ナノシートの可視光応答型光触媒への応用

チタン酸ナノシートの光触媒への応用を検討する。チタン酸ナノシートは厚さが約1 nm であり、量子サイズ効果のためにバンドギャップが大きい。よって、光触媒に用いようとした場合、非常に波長の短い紫外線しか吸収しない。そこで、ナノシートの末端に有機配位子を吸着させて、有機配位子の HOMO からナノシートの伝導帯への光吸収による電子励起を利用することや、吸着した有機配位子の光増感作用を利用することを検討する。それにより、それらのハイブリッドナノシートは可視光を吸収して光触媒に利用できるようになるだけでなく、ナノシートの表面が還元サイトとなり、有機配位子が吸着している部分が酸化サイトとなるため、酸化サイトと還元サイトを空間的に分離することも可能になるかもしれない。チタン酸ナノシートはワイドバンドギャップなため、本来、光触媒に利用しにくい材料であるが、ボトムアップ合成したナノシートの面内サイズが小さいという特長を有効に活用することにより、興味深い特長をもつ光触媒を作れないかを検討する。

#### (2) ゾルゲル法による有機・無機ハイブリッド薄膜の作製

金属酸ナノシートのボトムアップ合成では多くの場合、強塩基条件で行われる。強塩基性のゾルをコーティングゾルに用いて薄膜作製すると、基板の腐食などの問題が生じるおそれがあるために望ましくない。そこで、弱塩基性や中性のナノシートゾルの合成を検討した。ボトムアップ合成法では、金属酸と水酸化テトラアルキルアンモニウム(NR4OH)の酸塩基反応で層状金属酸塩やそれが層剥離した金属酸ナノシートが得られる。非常に弱い酸である金属酸を酸として

用いているために、強塩基性条件が必要となる。そこで、金属成分を塩基とした酸塩基反応でのボトムアップ合成を考えた。具体的には、アルミノリン酸やチタノリン酸などのメタロリン酸ナノシートの合成を検討した。

また、チタン酸ナノシートの過剰な塩基成分をアルコールでの洗浄で取り除き、層状チタン酸塩の高配向性薄膜をゾルゲル法で作製し、その光学異方性をエリプソメータで評価した。まずは、ボトムアップ合成に用いた4級アンモニウムイオン(NR₄+)が層間に入った層状チタン酸塩でどの程度の異方性となるのかを調べた。

### (3) 様々な金属酸ナノシートのボトムアップ合成

これまで検討してきた金属酸ナノシートの合成では、ナノシート中に金属イオンを 1 種類だけ含んでいるものしか取り扱ってこなかった。ここでは、層状ペロブスカイトのように金属酸層の中に 2 種類の金属イオンを含むもののボトムアップ合成を検討する。 反応物の種類が増えると反応が複雑になるので、まずは、層状ペロブスカイトを水熱処理のようなボトムアップ手法で合成して、2 種類の金属イオンを含む金属酸層の形成に必要な条件を見出し、その条件を満足しながら、層間陽イオンを有機物に代えることを検討した。

また、これまで絶縁性の金属酸ナノシートしか扱ってこなかったが、金属性の金属酸ナノシートの合成も検討することとした。金属イオンを混合原子価とすることで、金属性の特性が出現するのではないかと考え、本研究では、特性を調べる前にまずは、4価と5価のバナジウムイオンを含むバナジン酸ナノシートがボトムアップ合成できるかどうかを検討することとした。

#### 4.研究成果

#### (1) 有機配位子で化学修飾した金属酸ナノシートの可視光応答型光触媒への応用

まず、チタン酸ナノシートの面内サイズを有効利用して可視光応答型の光触媒を作製するために、ナノシートに有機配位子を吸着させて、可視光吸収するようになるのかを調べた。有機配位子としては、カテコール,過酸化水素,2,5-ジヒドロキシテレフタル酸(DHTP)の3つについて検討した。チタン酸ナノシートゾルに有機配位子を添加したゾルのUV-vis スペクトルを Figure 1 に示す。いずれの場合も、チタン酸ナノシートに有機配位子を吸着させることで着色し、可視光を吸収するようになった。カテコールと過酸化水素では、金属錯体でみられる LMCT 遷移のよ

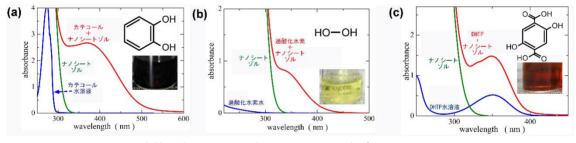


Figure 1 有機配位子とチタン酸ナノシートの混合ゾルの UV-vis スペクトル
(a) カテコール, (b) 過酸化水素, (c) DHTP

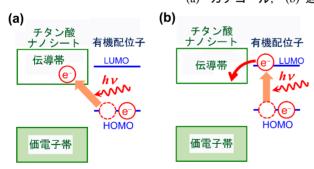


Figure 2 有機配位子が吸着したチタン酸ナノシートの 光吸収 (a) LMCT 遷移, (b) 光増感

うな(Figure 2a)、DHTP では光増感作用でみられるような(Figure 2b)光吸収挙動を示した。

また、有機配位子の吸着サイトを調べるために、配位子を添加したナノシートゾルを乾燥して、生成した層状チタン酸塩の面間隔を XRD により測定した。配位子が表面に吸着すると、層状チタン酸塩の層間は広がり、配位子が末端に吸着すれば、層間距離は変化しないと考えられる。測定した結果、いずれの配位子においても、Figure 3 に示すように、ナノシートの末端にダングリングボンドを利用して吸着していることが分かった。つまり、



Figure 3 有機配位子のチタン酸 ナノシートへの吸着

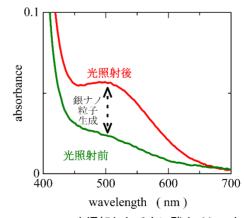


Figure 4 DHTP を添加したチタン酸ナノシート ゾルの光照射による UV-vis スペクトルの変化

光触媒に応用した場合、酸化サイトと還元サイトの空間的分離が期待された。

カテコールの吸着においては、過剰に吸着させるとナノシートの構造が壊れることが分かったため、あとの2つの配位子を添加したチタン酸ナノシートゾルを用いて、光触媒特性を評価した。光触媒活性は、[Ag(NH3)2]\*の銀ナノ粒子への還元で評価した。その結果、Figure 4に示すように、DHTP を添加したナノシートゾルが高い光触媒活性を示した。しかし、過酸化水素添加試料では光触媒活性は認められなかった。Figure 2で示したような、光吸収機構の違いにより、生成した電子とホールの再結合速度が違うのではないかと考えられた。

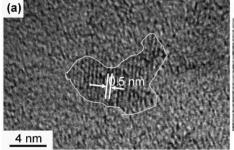
以上の結果より、ボトムアップ合成した金属酸ナノシートの特長を利用して、有機配位子とハイブリッド化した可視光応答型光触媒が作製できることが明らかとなった。

#### (2) ゾルゲル法による有機・無機ハイブリッド薄膜の作製

まず、ガラス基板などの腐食が起こらない酸性から弱塩基性でのナノシートのボトムアップ合成を検討した。金属イオンの水酸化物とリン酸の酸塩基反応でメタロリン酸を合成して、メタロリン酸と NR40H の酸塩基反応で層状メタロリン酸を合成し、その層剥離でメタロリン酸ナノシートを調製することを考えた。これらの反応であれば酸性から弱塩基性で起こることが期待できる。原料をすべて混合して一段階のワンポットで合成を検討した。アルミノリン酸ナノシートを合成した結果、2種類の構造の小さなフレーク状のナノシートが得られた(Figure 5a)。ゲル中に分散した状態で生成したが、ゲルの洗浄により、水に高分散したコロイド粒子として取り出すことができた。また、チタノリン酸ナノシートもワンポット合成できた。その生成は、Ti<sup>4+</sup>種、

リン酸 成 の R4OH の 間響 を R4OH の 間響 を R4OH を 下 で を R4OH を で を R4OH を で を R4OH を で を R4OH を に の る と 性 で を に 条 き た ( Figure 5b )。

また、チタン



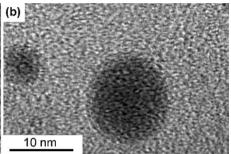


Figure 5 (a) アルミノリン酸ナノシートと(b) チタノリン酸ナノシートの TEM 像

酸ナノシートをアルコールで洗浄して、余分な有機塩基成分を除去したチタン酸ナノシートゾルを用いて層間に N(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>・イオンをもつ層状チタン酸塩の高配性薄膜をゾルゲル法によりガラス基板上に作製して、その光学異方性をエリプロメータにより評価した。リプソメータで入射角を変化させながら屈折率を設定した結果、屈折率の波長分散に入射角依存性はであるにもかかわらず、この薄膜は光学異方性をもたためあるにもかかわらず、この薄膜は光学異方性をもたためにとが分かった。光学異方性を薄膜にもたせるとが分かった。光学異方性をあるとが分を高により大きな有機成分を導入する必要がある。また、層間に N(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>・イオンをもつ層状チタンは、また、層間に N(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>・イオンをもつ層状チタンは、表鎖アルキル基をもつ界面活性

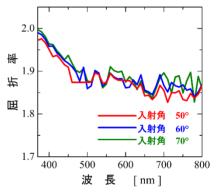


Figure 6 層間に N(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>+イオンをもつ 層状チタン酸塩薄膜の屈折率の波長分散

剤で調製したラメラ層を層間に組み込むことで、上に示した 2 つの問題点を同時に解決できると考えられる。今後も、界面活性剤が作るメソ構造と、ボトムアップ合成した金属酸ナノシートからなる、様々な光学異方性をもつ有機・無機ハイブリッド薄膜の作製を検討する予定である。

## (3) 様々な金属酸ナノシートのボトムアップ合成

ボトムアップ合成した金属酸ナノシート独自の特性を活かした応用を検討するうえで、様々な特性をもったナノシートをすることは重要となる。本研究では新たに、主に2つのタイプのナノシートのボトムアップ合成を検討した。まず一つ目は、ナノシート中に2種類の金属イオンを含むナノシートである。これまでは1種類の金属イオンをもつナノシートの合成しか検討してこなかった。しかし、層状ペロブスカイトのように様々な機能性をもつナノシートには2種類以上の金属イオンをもつものも多い。もう一つは、金属性をもつナノシートである。これまで絶縁性のナノシートしか合成してこなかったが、上に示したような、光学材料などへの応用を考えたとき、様々な屈折率をもつものが必要となり、金属性ナノシートも重要となってくる。

まず、2種類の金属イオンを含むものとして、Nb⁵+イオンをもつ層状ペロブスカイトに注目した。その合成条件を検討した結果、2種類の金属イオンをもつ金属酸層を形成するには、150℃以上の高温での熱処理が必要であることが分かった。その他に、トレランスファクターが1に近い、歪の小さな金属酸層が生成しやすいことや、層間陽イオンはサイズが大きいものが生成しやすことなども明らかとなった。これらの結果をもとに、層間に嵩高い陽イオンをもつ層状ペロブ

スカイトの合成を検討した。しかし、嵩高い陽イオ ンは、大きな熱振動のために高温では層状化合物を 与えないことが分かった。つまり、2種類の金属イ オンをもつ金属酸層の形成には高温が必要である が、嵩高い陽イオンを層間にもつには高温は適さな いことから、このような金属酸ナノシートはボトム アップ合成できないことが分かった。この結論が正 しいのかを調べるために、高温でも剛直なラメラ層 を形成することが予想されるアルキルアミンを層間 にもち、金属酸層が W<sup>6+</sup>と Cs<sup>+</sup>の 2 種類のイオンを含 む層状金属酸塩のボトムアップ合成を検討した。そ の結果、Figure 7 に示すように、高温でも剛直なラ メラ層を形成する、アルキル鎖が十分に長いアルキ ルアミンを用いないと、有機成分を層間にもつ層状 タングステン酸セシウムは生成せず、また、W<sup>6+</sup>と Cs<sup>+</sup> を含む金属酸層の形成には 150℃ 以上の高温での熱 処理が必要であることが分かった。つまり、層状タ ングステン酸セシウムの合成からも、層状ペロブスカ イトの合成で得られた結論が正しいことが裏付けら れた。ここで、有機成分を層間にもつ層状タングステ ン酸セシウムが合成できたので、それらを有機溶媒中 に分散して層剥離し、タングステン酸セシウムナノシ ートを調製した (Figure 8)。

金属性金属酸ナノシートのボトムアップ合成も検討した。混合原子価の金属イオンをもつナノシートとすることで金属性の特性が得られるのではないかと考え、V<sup>4+</sup>と V<sup>5+</sup>をもつバナジン酸ナノシートの合成を検討している。このような混合原子価のバナジン酸層と嵩高い層間陽イオンをもつ層状バナジン酸塩の合成は既に報告されている。その報告と同様に、まず層

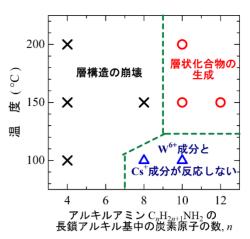


Figure 7 層状タングステン酸セシウムの ボトムアップ合成の結果

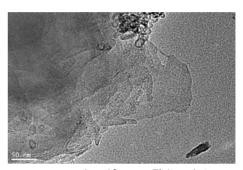


Figure 8 タングステン酸セシウム ナノシートの TEM 像

状バナジン酸塩を合成した。その結果、嵩高い層間陽イオンをもつ層状バナジン酸塩は合成できたものの、沈殿として生成し、層剥離によるナノシート生成は認められなかった。この合成では、高温の熱処理を行っており、部分的に金属酸層の間で縮重合が起こっているのではないかと考えられる。そこで、比較的低い温度での合成を検討した結果、[V<sub>8</sub>O<sub>20</sub>]⁻ナノシートが合成できることが分かった。V⁴と V⁵⁺をもつバナジン酸ナノシートには様々な結晶構造のものが知られているので、バナジウムイオンの酸化数の制御により種々のバナジン酸ナノシートのボトムアップ合成を現在も検討している。

## 5 . 主な発表論文等

「雑誌論文 〕 計4件(うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件)

| [〔雑誌論文〕 計4件(うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件)   |                    |
|---|--------------------|
| 1.著者名   | 4.巻                |
| T. Ban, T. Wakita, R. Yokoyama, T. Miyake, Y. Ohya  | 20                 |
| 2.論文標題  | 5 . 発行年            |
| Influence of the negative charge density of metalate nanosheets on their bottom-up synthesis                      | 2018年              |
| 3.雑誌名   | 6.最初と最後の頁          |
| CrystEngComm  | 3559-3568          |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/c8ce00642c  | <br>  査読の有無<br>  有 |
| オープンアクセス<br>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   | 4.巻                |
| Ban Takayuki, Iriyama Shota, Ohya Yutaka  | 29                 |
| 2.論文標題  | 5 . 発行年            |
| Bottom-up synthesis of aluminophosphate nanosheets by hydrothermal process  | 2018年              |
| 3.雑誌名   | 6.最初と最後の頁          |
| Advanced Powder Technology  | 537-542            |
| 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)   | 査読の有無              |
| 10.1016/j.apt.2017.10.013   | 有                  |
| オープンアクセス<br>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   | 4.巻                |
| Ban Takayuki、Kaiden Takafumi、Ohya Yutaka  | 19                 |
| 2.論文標題<br>Hydrothermal Synthesis of Layered Perovskite-Structured Metal Oxides and Cesium Tungstate<br>Nanosheets | 5 . 発行年<br>2019年   |
| 3.雑誌名   | 6.最初と最後の頁          |
| Crystal Growth & Design   | 6903~6910          |
|   |                    |
| 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)   | 査読の有無              |
| 10.1021/acs.cgd.9b00515   | 有                  |
| オープンアクセス<br>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   | 4.巻                |
| Ban Takayuki, Yamada Hiroki, Imaeda Kota, Inoue Tomohiro, Takai Chika, Ohya Yutaka                                | 128                |
| 2.論文標題  | 5.発行年              |
| Light absorption and photocatalysis of flake-like titanate nanosheets chemically modified by organic ligand       | 2020年              |
| 3.雑誌名 Journal of Ceramic Society of Japan   | 6.最初と最後の頁<br>印刷中   |
|   |                    |
| 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)   | 査読の有無              |
| 10.2109/jcersj2.128.P11-1   | 有                  |
| オープンアクセス<br>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24件(うち招待講演 5件/うち国際学会 4件)  |
|---|
| 1.発表者名  |
| T. Ban  |
|   |
|   |
|   |
| Bottom-up Synthesis of Metalate Nanosheets by Aqueous Solution Process                        |
| Bottom up dynthesis of metarate handsheets by Aqueous sorution indeess                        |
|   |
|   |
| 3.学会等名  |
| International Congress on Pure & Applied Chemistry Langkawi (ICPAC Langkawi 2018)(招待講演)(国際学会) |
|   |
| 4.発表年   |
| 2018年   |
|   |
| 1.発表者名  |
| 一样。隆幸·  |
|   |
|   |
| 2.発表標題  |
| ・ 水溶液プロセスによる金属酸ナノシートおよびナノフレークのボトムアップ合成  |
| 小石成プロで入による並動的ファファーのもじァアファーフのボームアフラロ版  |
|   |
|   |
| 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 「元素プロック材料の高機能化への合成戦略」セッション(招待講演)                                      |
|   |
| 4.発表年   |
| 2018年   |
|   |
| 1.発表者名  |
| 浅野慧斗,伴 隆幸,大矢 豊  |
|   |
|   |
| 2 . 発表標題  |
| 溶液プロセスによるチタノリン酸ナノシートのボトムアップ合成   |
|   |
|   |
|   |
| 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 改丰之夕  |
| 1.発表者名  |
| 山田紘生,井上智博,伴 隆幸,大矢 豊   |
|   |
|   |
|   |
| チタン酸ナノフレークへの有機配位子の吸着挙動  |
|   |
|   |
|   |
| 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<br>伴 隆幸,脇田高弘,横山 良,三宅辰弥,大矢 豊  |
|---|
|   |
| 2 . 発表標題<br>水溶液プロセスによる金属酸ナノシートのボトムアップ合成に対するナノシートの負電荷密度の影響   |
|   |
| 3 . 学会等名<br>第56回粉体に関する討論会   |
| 第30凹桁件に関する計画云<br>4.発表年  |
| 2018年   |
| 1.発表者名<br>浅野慧斗,伴 隆幸,大矢 豊  |
|   |
| 2 . 発表標題<br>チタノリン酸ナノシートのボトムアップ合成  |
|   |
| 3. 学会等名   |
| 平成30年度日本セラミックス協会 資源・環境関連材料部会 講演・討論会<br>4 . 発表年  |
| 2018年   |
| 1.発表者名<br>山田紘生,井上智博,伴 隆幸,大矢 豊   |
|   |
| 2 . 発表標題<br>チタン酸ナノフレークへの配位子の吸着挙動  |
|   |
| 3.学会等名  |
| 平成30年度日本セラミックス協会 資源・環境関連材料部会 講演・討論会<br>4.発表年  |
| 2018年   |
| 1 . 発表者名<br>Takayuki Ban, Takahiro Wakita, Yutaka Ohya  |
|   |
| 2 . 発表標題<br>Influence of negative charge density of metalate slabs in layered metalates on their exfoliation  |
| The second control of |
| 3. 学会等名   |
| 19th International Sol-Gel Conference (SOL GEL 2017)(国際学会) 4.発表年  |
| 2017年   |
|   |

| 1.発表者名   |
|--|
| 脇田高弘,伴 隆幸,大矢 豊   |
|  |
|  |
|  |
| 2.発表標題   |
| コバルト酸ナノシートの生成条件の解明   |
|  |
|  |
| 2  |
| 3.学会等名   |
| 第54回 東海若手セラミスト懇話会 夏季セミナー   |
| A ※主任  |
| 4 . 発表年  |
| 2017年  |
| 1  |
| 1.発表者名   |
| 脇田高弘,伴 隆幸,大矢 豊   |
|  |
|  |
| 2.発表標題   |
| 2.光祝信題<br>コバルト酸ナノシートの生成条件の解明   |
| コハル 日政ノファー「ツエルホ」「ツ州市   |
|  |
|  |
| 3.学会等名   |
| 日本ゾル-ゲル学会 第15回討論会  |
| ロケンル フルナム おり目的にム   |
| 4.発表年  |
| 2017年  |
| 4V11 T   |
| 1.発表者名   |
| B田高弘,伴 隆幸,大矢 豊   |
|  |
|  |
|  |
| 2.発表標題   |
| 金属酸ナノシートの生成に対する金属の酸化数の影響   |
| が にゅうがく 、 、 、 、 、 ・ 、 ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・ ・  |
|  |
|  |
| 3 . 学会等名   |
| 第33回 日本イオン交換研究発表会  |
|  |
| 4 . 発表年  |
| 2017年  |
|  |
| 1.発表者名   |
| 脇田高弘,伴 隆幸,大矢 豊   |
|  |
|  |
|  |
| 2.発表標題   |
| マンガン酸ナノシートの合成とそれに対するマンガンイオンの酸化数の影響   |
| A THE BOX OF THE PROPERTY OF T |
|  |
|  |
| 3.学会等名   |
| 第56回 セラミックス基礎科学討論会   |
|  |
| 4 . 発表年  |
| 2018年  |
| I  |
|  |
|  |
|  |

| 1. 発表者名  |
|--|
| 伴 隆幸   |
|  |
|  |
|  |
| 2 . 発表標題   |
| 水溶液プロセスによる金属酸フレーク状ナノシートのボトムアップ合成   |
|  |
|  |
| 2  |
| 3 . 学会等名   |
| トークシャワーイン九州2019(招待講演)  |
|  |
| 4.発表年  |
| 2019年  |
|  |
| 1. 発表者名  |
| 伴 隆幸   |
|  |
|  |
|  |
| 2.発表標題   |
| 水溶液プロセスによる金属酸ナノシートおよびナノフレークのボトムアップ合成   |
|  |
|  |
|  |
| 3. 学会等名  |
| 2019年度第1回粉体グリーンプロセス研究会(招待講演)   |
|  |
| 4.発表年  |
| 2019年  |
|  |
| 1. 発表者名  |
| 伴 隆幸   |
|  |
|  |
|  |
| 2.発表標題   |
| 水溶液プロセスによるフレーク状金属酸ナノシートのボトムアップ合成   |
|  |
|  |
|  |
| 3. 学会等名  |
| 第 39 回電子材料研究討論会(招待講演)  |
|  |
| 4.発表年  |
| 2019年  |
|  |
| 1 . 発表者名   |
| Takayuki Ban, Ayaka Ito, Takafumi Kaiden, Takahiro Wakita, Chika Takai, and Yutaka Ohya  |
|  |
|  |
|  |
| 2. 発表標題  |
| Flake-Like Metalate Nanosheets Synthesized by Bottom-Up Process in Aqueous Solutions   |
|  |
|  |
| and the first term of the second seco |
| 3 . 学会等名   |
| The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13)(国際学会)  |
|  |
| 4. 発表年   |
| 2019年  |
|  |
|  |
|  |
|  |

| Ami Hamajima, Naoya Akao, Chika Takai, Yutaka Ohya, and Takayuki Ban                               |
|--|
|  |
|  |
| 2 . 発表標題   |
| Z . 光衣标版图<br>Enlargement of Titanate Nanosheets Utilizing the Complexation Ability of Fluoride Ion |
|  |
|  |
| 3 . 学会等名   |
| The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13)(国際学会)                              |
| 4.発表年  |
| 2019年  |
| 1.発表者名   |
| 池田典生、高井千加、大矢豊、伴隆幸  |
|  |
|  |
| 2 . 発表標題   |
| チタン酸ナノシートゾルを用いて作製したゾルゲル薄膜の屈折率評価  |
|  |
| <ol> <li>当点学々</li> </ol>   |
| 3 . 学会等名<br>日本セラミックス協会 2020年年会   |
|  |
| 4 . 発表年<br>2020年   |
| 2020   |
| 1.発表者名   |
| 浅野慧斗、高井千加、大矢 豊、伴 隆幸  |
|  |
| 2  |
| 2 . 発表標題<br>チタノリン酸ナノシートのボトムアップ合成に対する   |
|  |
|  |
| 3 . 学会等名   |
| 第58回セラミックス基礎科学討論会  |
| 4.発表年  |
| 2020年  |
| 1  |
| 1.発表者名<br>山田紘生、井上智博、高井千加、大矢 豊、伴 隆幸   |
|  |
|  |
| 2 . 発表標題   |
| 有機配位子で化学修飾したフレーク状チタン酸ナノシートの可視光吸収   |
|  |
|  |
| 3.学会等名<br>第58回セラミックス基礎科学討論会  |
|  |
| 4. 発表年   |
| 2020年  |
|  |

| 1.発表者名<br>浅野慧斗、高井千加、大矢 豊、伴 隆幸                  |
|--|
| 2 . 発表標題<br>チタノリン酸ナノシートのボトムアップ合成およびナノシートの熱的安定性 |
| 3 . 学会等名<br>日本ゾル-ゲル学会 第17回討論会                  |
| 4 . 発表年 2019年                                  |
| 1.発表者名 山田紘生、井上智博、高井千加、大矢 豊、伴 隆幸                |
| 2 . 発表標題<br>チタン酸ナノフレークに対する有機配位子の吸着挙動           |
| 3 . 学会等名<br>日本ゾル-ゲル学会 第17回討論会                  |
| 4 . 発表年<br>2019年                               |
| 1.発表者名<br>浅野慧斗、高井千加、大矢 豊、伴 隆幸                  |
| 2 . 発表標題<br>嵩高い層間陽イオンを持った層状チタノリン酸塩のボトムアップ合成    |
| 3 . 学会等名<br>第1回資源・環境関連材料部会討論会                  |
| 4 . 発表年 2019年                                  |
| 1.発表者名<br>山田紘生、井上智博、高井千加、大矢 豊、伴 隆幸             |
| 2 . 発表標題<br>チタン酸ナノフレークに対する有機配位子の吸着挙動           |
| 3 . 学会等名<br>第58回 東海若手セラミスト懇話会 2019年 夏期セミナー     |
| 4 . 発表年 2019年                                  |
|  |

| ١ | 図書 ] | 計1件 |
|---|------|-----|
|   |      |     |

| COOL HILL                                       |         |
|---|---------|
| 1.著者名   | 4.発行年   |
| 伴 隆幸  | 2017年   |
|   |         |
|   |         |
|   |         |
| 2 . 出版社   | 5.総ページ数 |
| シーエムシー出版  | 8       |
|   |         |
|   |         |
| 3 . 書名  |         |
| ゾル-ゲルテクノロジーの最新動向 (第12章 無機ナノフレークやナノシートのボトムアップ合成) |         |
| (   |         |
|   |         |
|   |         |
|   |         |

### 〔産業財産権〕

## 〔その他〕

|伴 隆幸,「水系ゾルを用いたゾルゲル法によるナノ材料合成」,月刊 ファインケミカル,48 [8],5-12,2019.

伴 隆幸,「ゾル-ゲル法による材料合成の基礎と各種酸化物薄膜の作製」,R&Dサポートセンター セミナー,2019年3月20日,江東区産業会館(東京・江東区)

岐阜大学 化学・生命工学科 大矢・伴研究室 https://www1.gifu-u.ac.jp/~mc2/

#### . 研究組織

| _ |  |                           |                       |    |
|---|--|---------------------------|-----------------------|----|
| - |  | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |