

平成30年 8月31日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05647

研究課題名(和文) ワイドバンドギャップ酸窒化物の組成・アニオン配列・粒径制御と高機能化

研究課題名(英文) Controls of composition, anion arrangement and particle sizes in wide bandgap oxynitrides

研究代表者

森賀 俊広 (Moriga, Toshihiro)

徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授

研究者番号：90239640

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)：本研究では、以下の(1)層状 $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$ 酸窒化物赤色顔料、(2)青色光励起可能な $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$ 酸窒化物蛍光体、(3)岩塩型 $\text{LiTi}_2(\text{O},\text{N})_4$ 系酸窒化物電極材料を対象を絞り、酸窒化物中におけるO/N比やアニオン/カチオン比、粒子径を調整することにより特性を制御することに加え、結晶構造中における酸化物イオン、窒化物イオンの配列やその秩序配列の結果、生じる結合性の差違による電子状態の変化を解析・制御することにより、既存の酸窒化物の特性を凌駕する複金属酸窒化物を生み出し、またその優れた機能性をより環境に配慮した方法で実現するためのプロセスを開発した。

研究成果の概要(英文)：In this study, the researchers focused on the three kinds of oxynitrides, (1)  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3$  red pigment with layered structure, (2) blue-light excitable  $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  phosphors and (3) rock-salt type  $\text{LiTi}_2(\text{O},\text{N})_4$  electrifieds by controlling the anion (O/N) ratio as well as anion-to-metal ratio to improve their characteristics. The researchers also clarify cation and anion arrangements in the crystal structure and the reason(s) why these oxynitrides reveal more excellent properties than oxide counterparts from the viewpoint of crystal chemistry. Finally some eco-friendly synthetic processes have been proposed to maintain sustainable societies.

研究分野：無機材料化学

キーワード：酸窒化物 化学量論 顔料 蛍光体 電極材料 結合性 アニオン比

## 1 . 研究開始当初の背景

青色発光ダイオードの GaN や赤色蛍光体  $\text{CaAlSiN}_3 : \text{Eu}$  などに代表される、金属酸化物を遥かにしのぐ高い機能性をもつ窒化物および酸窒化物が、新たなグリーンイノベーションにつながる材料としても注目されていた。研究代表者は、バンドギャップが 2.1eV で赤橙色を呈するペロブスカイト型  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  の組成をこの化学量論組成からずらし、適宜 La の一部を Sr に置換することにより、バンドギャップおよび反射率を制御し La, Sr, Ti, O, N の 5 つの元素で赤橙から黄・緑を経て青に至る顔料を作ること成功した。更に、赤橙色よりも赤みを帯びた試料を得るために、(1)  $\text{LaTaON}_2$  の  $\text{La}^{3+}$  の一部をイオン半径よりも大きい  $\text{Ba}^{2+}$  で置換し、Ta-(O,N)-Ta 結合の直線性を改善することにより共有結合性を増加させ光学バンドギャップを減少させること、および(2)  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  の Ti に比べ電気陰性度の若干大きい Nb を固溶させることにより、B カチオンとアニオンの電気陰性度の差を減少させて光学バンドギャップを減少させることを試みた。

$\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Ta}(\text{O},\text{N})_3$  において Ba 置換量 x を増加させると、電気的中性条件を満たすように O/N 比が増加したが、これに反し基礎吸収端の位置はレッドシフトするものの、同時に基礎吸収端以降長波長側の拡散反射率が低下し色調が暗くなった。これを改善するために NaCl フラックスをアンモニア窒化時に用いた 1 次粒子の凝集を押さえることで、吸収端以降の反射率の低下を押さえることに成功した。

$\text{LaTi}_{1-y}\text{Nb}_y(\text{O},\text{N})_3$  において Nb 置換量 y を増加させると、O/N 比は増加したがカチオン量に対するアニオン量が減少した。基礎吸収端の位置はレッドシフトし更に吸収端直後の 650nm 付近の光吸収の増加が見られ、吸収端以降反射率が増加した。これは、アニオン欠損生成によるドナー準位が伝導帯の下に形成されたことに対応すると考えられた。Nb 置換量  $x=0.2, 0.3$  の試料においては、その色度座標が赤色無機顔料の代表であるベンガラと非常に近い値を示し、Nb をドーピングすることで赤色顔料としてほぼ完成した。

## 2 . 研究の目的

これまで知られている複金属酸窒化物の中にも、 $\text{LaTiO}_2\text{N}$  のように実は酸化物イオンと窒化物イオン (アニオン) が秩序配列している可能性のあるものも少なからず存在し、その酸窒化物が持つ重要な性質をアニオン配置が支配していると考えられる。また、これらのアニオン配置を制御することにより、新たな物性を発現する複金属酸窒化物を見いだすことも重要である。

本研究では、以下の(1)酸窒化物顔料、(2)酸窒化物蛍光体、(3)酸窒化物電極材料を対象を絞り、酸窒化物中における O/N 比やアニオ

ン比、粒子径を調整することにより特性を制御することに加え、結晶構造中における酸化物イオン、窒化物イオンの配列やその秩序配列の結果、生じる結合性の差違による電子状態の変化を解析・制御することにより、既存の酸窒化物の特性を凌駕する複金属酸窒化物を生み出すことを目的とした。またその優れた機能性をより環境に配慮した方法で実現するためのプロセスを開発することも目的とした。

## 3 . 研究の方法

(1) ペロブスカイト関連  $\text{K}_2\text{NiF}_4$  型構造を有する  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  は、 $\text{SrO} \cdot \text{SrTaO}_2\text{N}$  と表すことができることから分かるように SrO 層と  $\text{SrTaO}_2\text{N}$  層が交互に積み重なった層状構造をとるが、SrO 層を利用した  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の他元素置換は  $\text{SrTaO}_2\text{N}$  に比べ容易に行えるため、構造歪みや光学的性質を制御し新しい機能を付与することが可能となることが期待される。しかしながら  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の合成法には、原料の 300h 以上の長時間にわたる窒化が必要であると報告されていた。そこで本研究では、前駆体試料を経由することで  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  のより簡便な合成条件の検討を行った。

$\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の合成には、出発原料として Sr 源に  $\text{SrCO}_3$ 、Ta 源に  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  を用い、仕込み組成を化学量論組成あるいはそれよりも Sr 過剰とした ( $\text{Sr}/\text{Ta} = 2, 2.3, 2.5, 3$ )。次いで 1300、5 時間で焼成することで金属酸化物前駆体を作製した。この前駆体試料を 500ml/min の  $\text{NH}_3$  ガス気流中、1000 で窒化処理することで目的とする酸窒化物試料を得た。

(2) 青色 LED と YAG:Ce 蛍光体を用いた民生用途の白色 LED においては、一般に波長 600nm 以上の赤色光成分が乏しく、青色 LED で励起可能で赤色発光を呈する蛍光体が探索されてきた。このうち  $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$  窒化物蛍光体は青色光でも高効率に励起可能ではあるが、窒素加圧雰囲気下、1600 以上の高温での焼成合成が必要とされてきた。また、原料も安定な Sr の炭酸塩などは使用できず、吸湿分解性の高い  $\text{Sr}_3\text{N}_2$  を用いる必要がありコストが大幅に上昇するため民生用途には不向きであった。

本研究では、 $\text{CaCO}_3$  や  $\text{SrCO}_3$ 、 $\text{Eu}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  および  $\text{SiO}_2$  を出発原料とし 5% 水素 95% 窒素混合ガス気流中、大気圧下の固相反応法においても、グラファイトボートを用いることにより、1400 焼成にて  $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$  や  $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$  蛍光体の単一相の合成に成功した。

(3) リチウムイオン二次電池は高出力、高容量などの利点があるものの、充放電時の発熱による異常発熱も見受けられる。そこで、本研究ではリチウムイオン二次電池の負極材料として共有結合性が強く熱的な安定性が優れていると考えられる Li-Ti 系酸窒化物に

着目した。Li-Ti 系酸窒化物は窒化物イオンが入ることによって、イオン結合性が優位である  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$  等の酸化物よりも共有結合性が増加すると考えられる。これにより熱的安定性が向上することが期待される。

出発原料として出発原料として  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ , ルチル型  $\text{TiO}_2$  を用いて目的とする化学量論量 ( $\text{Ti}/\text{Li}=1.25, 1.5, 2.0, 2.2, 2.5$ ) となるように秤量し、遊星型ボールミルを用いて 36 h 湿式混合を行った。乾燥後、空气中 600 °C, 10 h で焼成し、酸化物前駆体を得た。得られた前駆体を 0.4 L/min の  $\text{NH}_3$  雰囲気下 800 °C, 24 h 窒化处理することで目的とする酸窒化物粉末を得た。

続いて電極活物質、導電助剤の AB, 結着剤の PVDF を 8 : 1 : 1/wt% となるように秤量・混合し、電極を作製した。電極の対極に Li 金属箔, セパレータはポリプロピレン製不織布, 電解液は 1mol/L  $\text{LiPF}_6\text{-EC:DMC}=1 : 1/\text{vol}\%$  を用いた。これらを Ar 雰囲気下のグローブボックス内で、コイン型電池(CR2032)に組み立てた。レート特性評価はカットオフ電位 0.2~3.2V vs.  $\text{Li}/\text{Li}^+$ , レート特性比較は 100, 200, 500  $\text{mA g}^{-1}$  の電流で各 10 サイクルずつ行った。

#### 4. 研究成果

(1) 前駆体酸化物は Sr/Ta 比が 2.5 以下では, Sr/Ta 比に依存せず  $\text{Sr}_6\text{Ta}_2\text{O}_{10}$  が生成していたが, Sr/Ta 比の増加とともに格子定数は増加した。この酸化物前駆体を 24 時間窒化すると, Sr/Ta が化学量論組成に近いほど  $\text{SrTaO}_2\text{N}$  が多く生成し, Sr/Ta が大きいほど  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  が多く生成する傾向が見られたが, 単一相は得られなかった。更に 24 時間計 48 時間窒化すると, 化学量論組成の Sr/Ta=2 でほぼ  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の単一相が生成し, Sr/Ta 比の増加とともに, 不純物相である  $\text{Sr}(\text{OH})_2$  の残存量が多くなった。このとき生成している  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の格子定数は  $2 \leq \text{Sr}/\text{Ta} < 2.5$  で良く一致しており, 前駆体を経由することで短時間で安定した  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の合成に成功した。

この層状  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  がペロブスカイト  $\text{SrTaO}_2\text{N}$  よりもより赤い色を呈する原因について構造化学的見地から明らかにした。X 線リートベルト解析の結果, Fig.1 に示したように  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  中の (O,N) - Ta - (O,N) 結合角は  $180^\circ$  であるのに対し,  $\text{SrTaO}_2\text{N}$  では  $169.1^\circ$  と約  $10^\circ$  程度小さくなっており, Ta とアニオンの軌道の重なりが  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の方が強いことが示唆された。即ち,  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  では共有結合性がより優勢になることによりバンドギャップの狭窄が生じ, 結果としてより赤い色を呈することが考えられた。Ta(O,N)<sub>6</sub> 八面体中の Ta - (O,N) 結合距離も  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  の方が  $\text{SrTaO}_2\text{N}$  に比べ  $0.1\text{\AA}$  程度長くなっており, イオン結合性よりも共有結合性がより有意な状況にあることが示唆された。

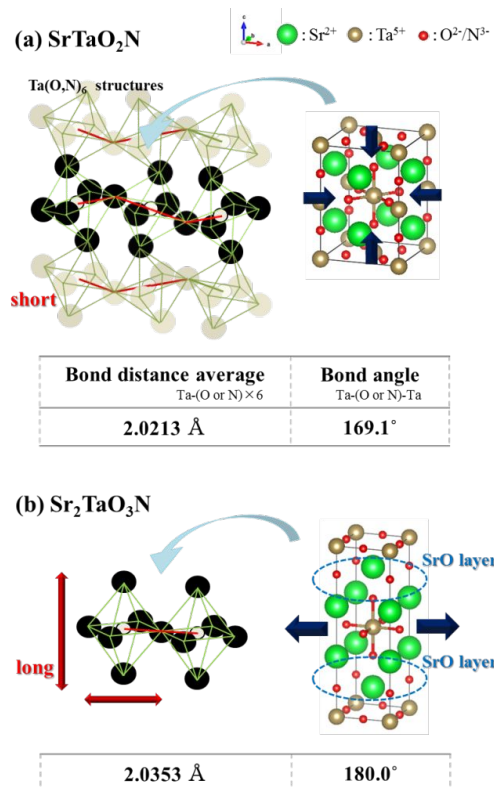


Fig. 1 Structural images, bond angle of Ta-(O or N)-Ta and distance of Ta-(O or N) for (a)  $\text{SrTaO}_2\text{N}$  and (b)  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$ .

(2) 仕込み原料比を変えた時の XRD パターンを Fig.2 に示す。グラファイトポートをを用いることで, 比較的温和な条件かつ空气中で安定な原料のみで  $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8\text{:Eu}^{2+}$  蛍光体の合成に成功した。(a)において, 原料中の N が不足しているにもかかわらず,  $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8$  の単一相が得られた。これはグラファイトポートを使用することで, 還元雰囲気下で  $\text{N}_2\text{-H}_2$  ガス中から試料へ窒素が供給され, 構造中に組み込まれたためであると考えられる。一方, (b)においては過剰の原料  $\text{Si}_3\text{N}_4$  が不純物 ( $-\text{Si}_3\text{N}_4$ ,  $-\text{Si}_3\text{N}_4$ ) を形成したと考えられる。したがって, カチオン原料比を化学量論比にした(a)の条件での合成が適当だと考えられる。

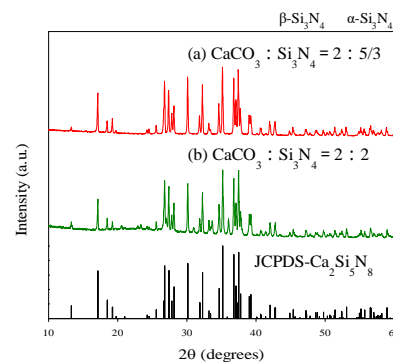


Fig. 2 XRD patterns of  $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8\text{:Eu}^{2+}$  phosphors heated at  $1400^\circ\text{C}$ -4h under  $\text{N}_2\text{-H}_2$  atmosphere.

(a)と同様な条件で原料に炭酸ストロンチウムを用いて合成したところ,  $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8$  の単一相が得られた。Fig.3 に  $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  と  $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  蛍光体の発光スペクトルを示した。 $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  と  $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  蛍光体はそれぞれ 577 nm, 602 nm にピークを持つブロードなスペクトルが得られた。このことから、これらの発光は  $\text{Eu}^{2+}$  特有の  $4f^65d^1 \rightarrow 4f^7$  遷移によるものであると考えられる。そして、 $\text{M}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  は M を Ca や Sr に変えるだけで、赤色領域でも異なる発光ピーク位置を持つ蛍光体を得られた。

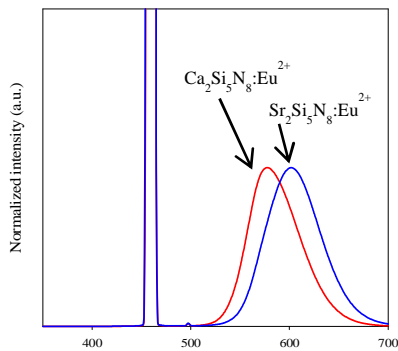


Fig. 3 Emission spectra of  $\text{Ca}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  and  $\text{Sr}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  phosphors heated at  $1400^\circ\text{C}$ -8h under  $\text{N}_2\text{-H}_2$  atmosphere. ( $\lambda_{\text{ex}}=460 \text{ nm}$ )

(3)リチウムイオン 2 次電池酸化物負極材料  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$  の更なる熱的安定性の向上と、酸化物イオンを窒化物イオンで置換することによる Li イオンの高容量化を目指し、岩塩型 Li-Ti 系酸窒化物 (LTON) を合成した。Ti/Li = 1.25 の試料には酸化物のピークが存在したものの、Fig.4 のように全試料において岩塩型構造を有する  $\text{Li}_{0.34}\text{Ti}_{0.66}\text{O}_{0.70}\text{N}_{0.57}$  と類似した回折ピークを確認した。また Ti/Li 比が小さくなるにつれ格子定数が減少することが明らかとなった。この酸窒化物試料を用いたコイン型ハーフセルの充放電曲線を測定したところ、Fig. 5 に示したように Ti/Li = 1.5 の試料で全試料中最大である約  $149 \text{ mAh g}^{-1}$  の放電容

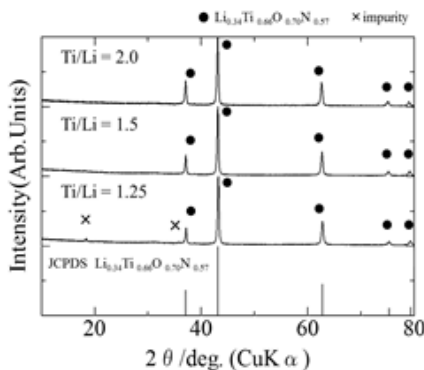


Fig. 4 XRD patterns of LTON samples prepared with different Ti/Li ratios.

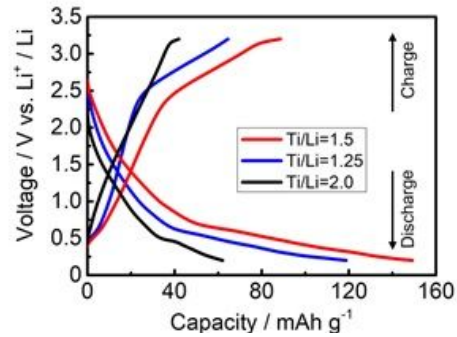


Fig. 5 The first discharge and charge curves of LTON samples at  $100 \text{ mA g}^{-1}$ .

量が得られた。

## 5 . 主な発表論文等

( 研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線 )

[ 雑誌論文 ] ( 計 10 件 )

(1) Edynoor bin Osman, Toshihiro Moriga, Kei-ichiro Murai, Mohd Warikh Abd Rashid, Mohd Edeerozey Abd Manaf, Photocatalytic activity of nanostructured tubular  $\text{TiO}_2$  synthesized using kenaf fibers as a sacrificial template, Journal of Industrial Crops and Products, 査読有, 113 巻, 2018, 210-216. DOI : 10.1016/j.indcrop.2018.01.027

(2) Tzu-Yi Li, Katsuya Nakata, Toshihiro Moriga, Shao-Ju Shih, Modification of grain boundary structure of  $\text{SrTiO}_3$  using hydroxyl additives, Materials International, 査読有, 44 巻, 2018, 3960-3965 . DOI : 10.1016/j.ceramint.2017.11.188

(3) 森賀俊広, 【総説】金属酸窒化物 - 化学量論からずらして持続可能な機能性材料を生み出す -, ケミカルエンジニアリング, 査読無, 62 巻, 2017, 429-437 .

(4) Toshihiro Moriga, Ryota Minakata, Yutaro Nomura, Hiroki Ishikawa, Kei-ichiro Murai, Masashi Mori, Stability and electrical conductivity of Nb- or Ta- doped  $\text{SrTiO}_3$  perovskites for inter- connectors in solid oxide fuel cells, Journal of Ceramic Society of Japan, 査読有, 125 巻 4 号, 2017, 223-226 . DOI: 10.2109/jcersj2.16251

(5) Narendra Sarda, Takanori Hayashi, Andrew Chan, Yuta Takeuchi, Kyosuke Harada, Kei-ichiro Murai, Geoffrey Waterhouse and Toshihiro Moriga, Synthesis and Optical Studies of  $\text{La}_{1-x}\text{Ti}_x\text{W}_x(\text{O},\text{N})_3$  Prepared by Sol-Gel Method, International Journal of Advanced Research, 査読有, 4 巻, 2016, 1329-1337.

<http://www.journalijar.com/article/7874/>

(6) Narendra Sarda, Takanori Hayashi, Yuta Takeuchi, Kyosuke Harada, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, A New Synthesis Route of Petrovskite-related  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  Oxynitride via  $\text{Sr}_2\text{Ta}_6\text{O}_{10.188}$ , AIP Conference Proceedings, 査読有, 1790 巻, 2016, 020016-1-4.  
<http://doi.org/10.1063/1.4968642>

(7) Narendra Sarda, Hiroshi Fujigaki, Yuma Ogita, Andrew Chan, Kei-ichiro Murai, Geoffrey Waterhouse and Toshihiro Moriga, Photoluminescent Properties of  $(\text{Ba}_{1-(x+y)}\text{Sr}_x\text{Eu}_y)_2\text{Si}_6\text{O}_{12}\text{N}_2$  Phosphors for White LED Applications, Journal of Nano Research, 査読有, 36 巻, 2016, 44-50.  
DOI : 10.4028/www.scientific.net/JNanoR.36.1

(8) Toshihiro Moriga, Hiroshi Fujigaki, Yuma Ogita, Issei Muguruma, Fumika Bando and Kei-ichiro Murai, X-ray Rietveld refinement of structure of Ba-deficient  $\text{Ba}_3\text{Si}_6\text{O}_{12}\text{N}_2:\text{Eu}$  phosphor, Modern Physics Letters. B, 査読有, 29 巻, 2015, 1540029 (5pages).  
DOI : 10.1142/S0217984915400291

(9) Narendra Sarda, Minami Omune, Takanori Hayashi, Andrew Chan, Satoshi Kataoka, Kei-ichiro Murai, Geoffrey Waterhouse and Toshihiro Moriga, Structural and optical properties of perovskite-type  $\text{LaTiO}_2\text{N}$  synthesized using urea or thiourea as co-nitriding agents, Journal of the European Ceramic Society, 査読有, 35 巻, 2015, 3311-3317.  
DOI : 10.1016/j.jeurceramsoc.2015.02.019

(10) Wan-Ting Chen, Andrew Chan, Dongxiao Sun-Waterhouse, Toshihiro Moriga, Hicham Idriss, and Geoffrey Waterhouse,  $\text{Ni}/\text{TiO}_2$ : A promising low-cost photocatalytic system for solar  $\text{H}_2$  production from ethanol-water mixtures, Journal of Catalysis, 査読有, 326 巻, 2015, 43-53.  
DOI : 10.1016/j.jcat.2015.03.008

〔学会発表〕(計 20 件)

(1) Yusuke Mizuta, Yu Umeoka, Kohei Shizukawa, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, Synthesis and Characterization of Novel rocksalt-type Oxynitride,  $\text{LiTi}_2(\text{O},\text{N})_z$  ( $Z=4$ ) used as Anode Materials, 4th International Forum on Advanced Technologies (IFAT2018).

(2) Hong Bo Jiang, Shibai Koki, Fukumura Kohei, Kei-ichiro Murai, Shao Ju Shih and Toshihiro Moriga, Luminescent properties of  $\text{Y}_4\text{SiAlO}_8\text{N}$  oxynitride phosphor activated by rare earth metal, 4th International Forum on Advanced Technologies (IFAT2018).

(3) Toshihiro Moriga, Takahashi Koshi, Takeuchi Yuta, Sarda G. Narendra, Kei-ichiro Murai and Geoffrey Waterhouse, Eco-friendly Preparation of  $\text{Sr}_2\text{TaO}_3\text{N}$  from Stoichiometrically-different Oxide Precursor, 9th International Symposium on Nitrides (ISNT2017).

(4) Hu Kui, Mizuta Yusuke, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, Synthesis and Characterization of Rocksalt-type Oxynitride  $\text{LiTi}_2(\text{O},\text{N})_z$  ( $z=4$ ) as an Electrode Material, 9th International Symposium on Nitrides (ISNT2017).

(5) Takahashi Koshi, Takeuchi Yuta, Sarda G. Narendra, I.N. Waterhouse Geoffrey and Toshihiro Moriga, 【招待講演】 Control of Optical Properties of Perovskite-related Oxynitride Pigments through Stoichiometries, International Union of Materials Research Societies - The 15th International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM 2017).

(6) Bo-Jiang Hong, Koki Shibai, Chi-Wei Hsiao, Mitsuo Oi, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, Convenient fabrication of red-orange nitride phosphors  $\text{M}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  ( $M=\text{Ca}, \text{Sr}$ ), International Union of Materials Research Societies - The 15th International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM 2017).

(7) Toshihiro Moriga, Takahashi Koshi, Shibai Koki, Hsiao Chih-Wei, Mizuta Yusuke, Hu Kui, Umeoka Yu and Kei-ichiro Murai, 【招待講演】 Eco-friendly Preparation of (Oxy)nitrides for Pigments, Phosphors and Electrodes, 8th International Conference on Advanced Materials Development and Performance (AMDP2017).

(8) Mitsuo Oi, Chih-Wei Hsiao, Koki Shibai, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, Development of Oxynitride Green Phosphor  $\text{Sr}_3\text{Si}_6\text{O}_3\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$ , The Third International Forum on Advanced Technologies (IFAT2017).

(9) Chih-Wei Hsiao, Mitsuo Oi, Koki Shibai, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, Fabrication of Red-orange Nitride Phosphors  $\text{M}_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}^{2+}$  ( $M=\text{Ca}, \text{Sr}$ ) for White LEDs, The Third International Forum on Advanced Technologies (IFAT2017).

(10) Toshihiro Moriga, 【招待講演】 Eco-Friendly Preparation of Oxynitride Pigments Phosphors and Electrode Materials, International Conference on Advanced Rechargeable Batteries & Allied Materials (ICARBM-2017).

(11) Toshihiro Moriga, 【招待講演】 Eco-Friendly Preparation of Oxynitride Pigments and Phosphors from Nonstoichiometric Mixture of

Starting Materials, BITs 6th Annual World Congress of Nano Science & Technology 2016.

(12) Toshihiro Moriga, Takeuchi Yuta, Sakai Namiko, Sarda Narendra, Harada Kyosuke, Hayashi Takanori and Kei-ichiro Murai, 【招待講演】 Synthesis from oxide precursor and structural refinement of  $K_2NiF_4$ -type  $Sr_2TaO_3N$  as a red pigment, The 2nd International Forum on Advanced Functional Materials and Polymer Materials (AFMP2016).

(13) Toshihiro Moriga, Nerendra Sarda, Mitsuo Oi, Hiroshi Fujigaki, Yuma Ogita, Kei-ichiro Murai and Geoffrey Waterhouse, 【招待講演】 Control of Luminescent Properties of Oxynitride Phosphors through Cation Stoichiometry, International Symposium for Young Chemical Engineers 2016.

(14) Mitsuo Oi, Chih-Wei Hsiao, Koki Shibai, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, Synthesis and Optical Properties of  $Sr_3Si_6O_3N_8:Eu^{2+}$  Oxynitride Phosphors for White LEDs, International Symposium for Young Chemical Engineers 2016.

(15) Yuta Takeuchi, Narendra Sarda, Namiko Sakai, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, Synthesis and Structural Determination of  $K_2NiF_4$ -type Strontium Tantalum Oxynitrides, International Symposium for Young Chemical Engineers 2016.

(16) Narendra Sarda, Takanori Hayashi, Yuta Takeuchi, Kyosuke Harada, Kei-ichiro Murai and Toshihiro Moriga, A new synthesis and characterization of novel  $K_2NiF_4$ -type strontium tantalum oxynitride, 13<sup>th</sup> International Conference on Ceramic Processing Science (ICCP-13), 2016.

(17) Toshihiro Moriga, Sarda G. NARENDRA, Takanori HAYASHI, Yuta TAHEUCHI, Kyosuke HARADA, Kei-ichiro Murai and Geoffrey Waterhouse, 【招待講演】 Control of Optical Properties of Perovskite-related Oxynitrides through Stoichiometries, International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering 2016 (ICCMSE2016).

(18) Toshihiro Moriga, Narendra Sarda, Takanori Hayashi, Mitsuo Oi, Kei-ichiro Murai and Geoffrey Waterhouse, 【招待講演】 Control of Optical Properties of Oxynitride Pigments and Phosphors through Stoichiometries, International Conference on Functional Materials and Microwaves (ICFMM-2015).

(19) Toshihiro Moriga, 【招待講演】 Control of

Optical Properties of Oxynitride Pigments through Stoichiometries, 5th International Conference on Nanotek & Expo. 2015.

(20) Toshihiro Moriga, Waterhouse Geoffrey and Kei-ichiro Murai, 【招待講演】 Control of Optical Properties of Oxynitride Pigments and Phosphors through Cation and Anion Stoichiometries, International Forum on Advanced Functional Materials and Polymer Materials (AFMP2015).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

森賀 俊広 (MORIGA, Toshihiro)  
徳島大学・大学院社会産業理工学研究部  
(理工学域)・教授  
研究者番号：90239640

### (2)研究分担者

村井 啓一郎 (MURAI, Kei-ichiro)  
徳島大学・大学院社会産業理工学研究部  
(理工学域)・准教授  
研究者番号：60335784

### (3)連携研究者

なし

### (4)研究協力者

サルダ ナレンドラ (SARDA, Narendra)  
徳島大学大学院先端技術科学教育部博士  
後期課程学生(現, 日立造船株式会社勤務)