

令和 4 年 5 月 22 日現在

機関番号：13501

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2020

課題番号：17H03388

研究課題名(和文)水熱反応による物質探査の新しい展開

研究課題名(英文)New Development of Synthesis of New Compounds by Hydrothermal Reaction

研究代表者

熊田 伸弘 (Kumada, Nobuhiro)

山梨大学・大学院総合研究部・教授

研究者番号：90161702

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：“水熱反応(Hydrothermal Reaction)”は地質学において地球内部での反応に用いられてきた学術用語であり、高温・高圧下での主に水を溶媒とした反応である。地球内部での鉱物の結晶化や結晶成長の模倣である水熱反応を利用した無機化合物の合成や結晶育成が行われている。本研究では水熱反応を用いた無機化合物の合成において以下のような成果を得ることができた。新しいビスマス酸化物の発見とその特性評価、パイロクロア型ニオブおよびタンタル酸塩の合成とその銀イオン交換体の抗菌特性、新しいアルカリ金属ニオブおよびタンタルフッ化物の発見およびそのMn⁴⁺ドーパ体の蛍光特性

研究成果の学術的意義や社会的意義

水熱反応を用いた無機化合物の合成に関する研究は、ナノ粒子の粒子径および形態制御が主流である。それに対して一貫して物質探査を行い、新たな超伝導ビスマス酸化物や赤色蛍光を示すMn⁴⁺を含む新たな金属フッ化物を見出すことができた。さらに半導体製造プロセスに使われる高純度シリカ製品の端材を出発物質として層状アルカリケイ酸塩を合成することができ、さらにその銀イオン交換体が抗菌性を有することを示した。以上のように水熱反応を用いて新たな化合物を合成し、その特性評価を行うと同時に廃棄物の再利用に関する知見を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：“Hydrothermal Reaction” is an academic term used in geology for reactions inside the earth, and is a reaction mainly using water as a solvent under high temperature and high pressure condition. Inside the earth mineralization and crystal growth occur by hydrothermal reactions and they have been used for synthesis and crystal growth for inorganic compounds. In this study, the following results were obtained in the synthesis of inorganic compounds using hydrothermal reaction. (1) Discovery of new bismuth oxide and its characterization, (2) Synthesis of pyrochlore-type niobium and tantalum oxides and antibacterial properties of their silver ion-exchanged derivatives, (3) Discovery of new alkali metal niobium and tantalum fluorides and fluorescent properties of their Mn⁴⁺ doped derivatives

研究分野：無機合成化学

キーワード：水熱反応 結晶構造解析 超伝導体 光触媒 廃棄物 リサイクル

科学研究費助成事業 研究成果報告書

1. 研究開始当初の背景

水熱反応を用いた無機化合物の合成に関する研究は、ナノ粒子の粒子径および形態制御が主流である。そのような中で研究代表者は水熱反応を用いた物質探査に関する研究を行い、特にビスマス酸化物系では新しい超伝導体や可視光応答型の光触媒などの成果を得ていた。これらの成果を基にして、新たな機能の発現や反応機構の解明のために、水熱条件下での複合アニオン化、原子価制御および安定同位体導入による新しい無機化合物の創製および水熱反応における反応機構の解明や新しい反応経路の提案を行うことを当初の研究目的としていた。ビスマス系酸化物では新たな化合物を見出せるとともにニオブおよびタンタル系では酸化物でなく新たなフッ化物を合成することができた。安定同位体を用いた水熱反応の反応機構の解明については現在も継続中で、重水(D₂O)を溶媒に用いた水熱反応による検討を行っている。

2. 研究の目的

研究代表者はこれまでに水熱反応を用いて多くの新しい無機化合物を合成しており、特にビスマス酸化物系では新しい超伝導体や可視光応答型の光触媒などの成果を得ている。これらの研究成果を基にして、複合アニオン化、原子価制御および安定同位体導入による新しい無機化合物の創製および水熱反応における反応機構の解明や新しい反応経路の提案を行うことが本研究の目的である。

3. 研究の方法

水熱反応の出発物質には $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ 、ニオブ酸、タンタル酸および非晶質シリカなどを用いた。 $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ を出発物質に用いた場合にはビスマスの原子価の制御を試み、結晶構造の変化、超伝導などの物性および光触媒活性等の特性を調べた。ニオブ酸およびタンタル酸を用いてアルカリ金属を含むピロクロア型酸化物を合成し、アルカリ金属と銀イオンとのイオン交換体の抗菌特性を調べた。また、フッ化水素溶液を用いてアルカリ金属を含むフッ化ニオブおよびフッ化タンタルを合成し、 Mn^{4+} をドーピングしてその蛍光特性を評価した。

4. 研究成果

本研究によって新たに合成された化合物についてその合成方法、結晶構造および特性について以下に紹介する。

新しいビスマス酸化物の発見とその特性評価

これまでに $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ を出発物質とした水熱反応によって多くの新しい化合物を合成し、その結晶構造および諸特性を明らかにしてきた。出発物質の $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ は脱水によりイルメナイト型構造に変化することは知られていたが、水和相の結晶構造は明らかにされていなかった。そこで放射光 X 線回折データを用いて $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ の結晶構造の精密化を行うとともに高温 *in situ* 測定によりその脱水挙動を明らかにした。図 1 に $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ の結晶構造および脱水挙動を模式的に示す。

NaOH 水溶液を用いた水熱反応では **NaOH** 量および反応温度に依存して生成物が異なり、その中で新たに発見した $\text{Na}_3\text{Bi}_3\text{O}_8$ の結晶構造を単結晶 X 線回折データを用いて明らかにした。図 2 に $\text{Na}_3\text{Bi}_3\text{O}_8$ の結晶構造を示す。この化合物は Na_2MnCl_4 に関連した構造を持ち、化学組成は $(\text{Na}_{0.75} + \text{Bi}_{0.25}^{3+})_2\text{Bi}^{5+}\text{O}_4$ で表される混合原子価状態であった。この化合物は出発物質の $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ と同様に可視光応

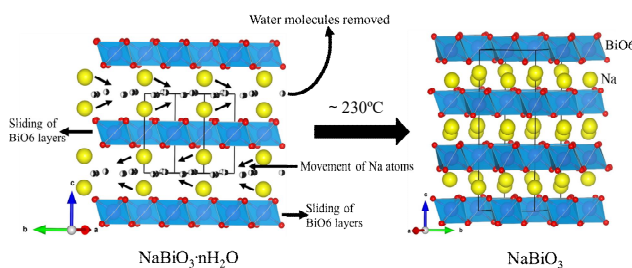


図 1 $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ の結晶構造および脱水挙動

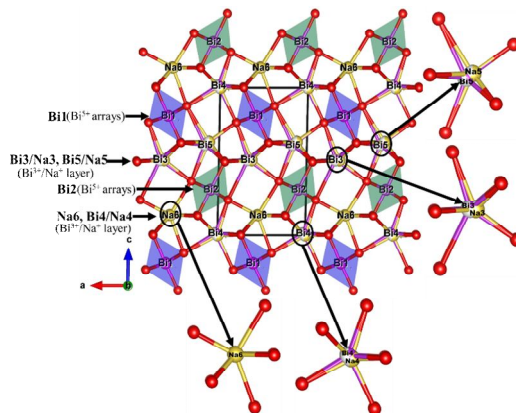


図 2 $\text{Na}_3\text{Bi}_3\text{O}_8$ の結晶構造

答型の光触媒活性を有していた。

アルカリ土類金属を含む水溶液を用いた場合には、パイロクロア型、 PbSb_2O_6 型およびトリルチル型化合物が生成することを報告したが、これまでに用いていなかった難溶性のアルカリ土類金属水酸化物の水溶液を用いることでパイロクロア型 $\text{Ca}_2\text{Bi}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Sr}_2\text{Bi}_2\text{O}_7$ および結晶性の高い PbSb_2O_6 型 BaBi_2O_6 を合成す

ることができ、放射光 X 線回折データを用いてその結晶構造を精密化した。パイロクロア型 $\text{Ca}_2\text{Bi}_2\text{O}_7$ および $\text{Sr}_2\text{Bi}_2\text{O}_7$ では Bi-Bi の金属結合を持つことが第一原理計算によって示された(図3)。また、 PbSb_2O_6 型 BaBi_2O_6 は $\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ と同様に可視光応答型の光触媒活性を有していた。

$\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ を溶融した KOH で処理することによって合成される $\text{KBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ を出発物質とした水熱反応によってダブルペロプスカイト型構造を持つ $(\text{Ba}_{0.54}\text{K}_{0.46})_4\text{Bi}_4\text{O}_{12}$ を合成することができた。 $(\text{Ba}_{0.54}\text{K}_{0.46})_4\text{Bi}_4\text{O}_{12}$ は $T_c \sim 30\text{ K}$ の超伝導体であった(図4)。

$(\text{Ba}_{0.54}\text{K}_{0.46})_4\text{Bi}_4\text{O}_{12}$ および $(\text{K}_{1.00})(\text{Ba}_{1.00})_3(\text{Bi}_{0.89}\text{Na}_{0.11})_4\text{O}_{12}$ において認められるようにペロプスカイト型構造の A サイトが規則化したダブルペロプスカイト型構造を取る超伝導を有するビスマス酸化物を水熱反応で合成することができる。これらは A サイトに Ba および K が含まれており、他のアルカリ金属およびアルカリ土類金属を用いて水熱合成を試みたところ、B サイトが規則化した $(\text{K}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})(\text{Na}_{0.01}\text{Ca}_{0.25}\text{Bi}_{0.74})\text{O}_3$ および $\text{Ba}_4\text{NaBi}_3\text{O}_{12}$ を合成することができた。これらの結晶構造を図5に示す。両者とも Bi の原子価は5価で

あり、半導体的な電気伝導性を示すとともに可視光応答型の光触媒特性を有していた。

希土類金属硝酸塩を含む水溶液を用いた場合には $\text{RBi}_2\text{O}_4\text{NO}_3$ (R : Tb, Dy, Er, Gd, Ho) が得られるが、これらの可視光照射下のフェノール分解に対する光触媒活性を調べた結果、Tb を含む化合物が他と比較して高活性であることがわかった。

金属硝酸塩水溶液を用いた場合には、 $\text{RBi}_2\text{O}_4\text{NO}_3$ (R : Tb, Dy, Er, Gd, Ho) の他にも特異な磁気フラストレーションを示す $\text{Bi}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}(\text{NO}_3)$ を報告してきたが、Co、Ni および Cu の硝酸塩、塩化物、硫酸塩を含む水溶液を用いた水熱反応を試みた。硝酸塩および塩化物の水溶液を用いた場合にはそれぞれ $\text{Bi}_2\text{O}_2(\text{OH})\text{NO}_3$ および BiOCl を基本とした結晶構造で Bi のサイトの一部が金属に置換した化合物が生成した。硫酸塩の水溶液を用いた場合には金属の種類に依存して未知相が生成し、硫酸水溶液を用いた場合には新しい化合物である BiOHSO_4 が生成した。 BiOHSO_4 については単結晶 X 線回折データを用いてその結晶構造を明らかにした(図6)。

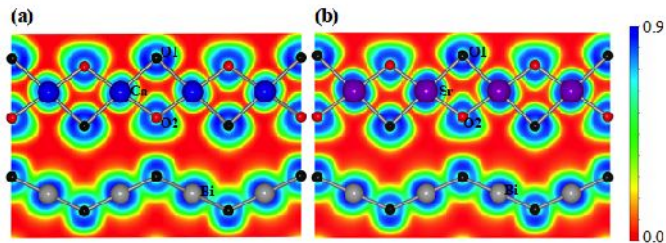


図3 $\text{Ca}_2\text{Bi}_2\text{O}_7$ (a)および $\text{Sr}_2\text{Bi}_2\text{O}_7$ (b)の電子密度分布

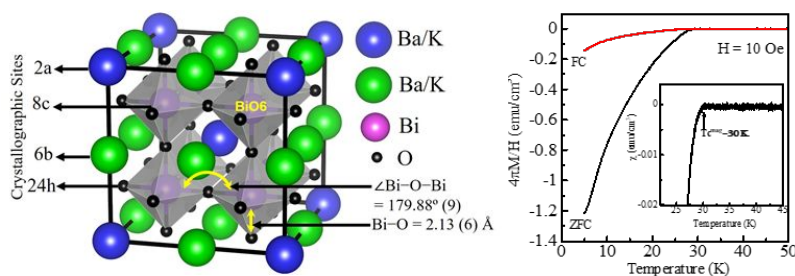


図4 $(\text{Ba}_{0.54}\text{K}_{0.46})_4\text{Bi}_4\text{O}_{12}$ の結晶構造(左)および磁化率の温度依存性(右)

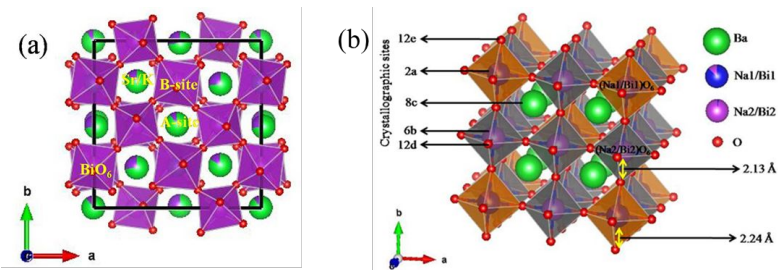


図5 $(\text{K}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})(\text{Na}_{0.01}\text{Ca}_{0.25}\text{Bi}_{0.74})\text{O}_3$ (左)および $\text{Ba}_4\text{NaBi}_3\text{O}_{12}$ (右)の結晶構造

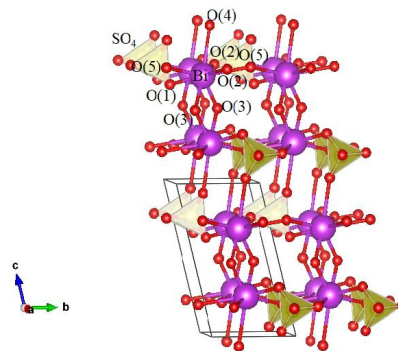


図6 BiOHSO_4 の結晶構造

$\text{NaBiO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ を出発物質とした水熱反応によるこれまでの研究業績をまとめて総説を発表した。

パイロクロア型ニオブおよびタンタル酸塩の合成とその銀イオン交換体の抗菌特性

Nb_2O_5 および非晶質 Ta_2O_5 を出発物質とした水熱反応によって合成されるパイロクロア型 $(\text{K}, \text{H})\text{MO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ($\text{M} : \text{Nb}, \text{Ta}$) についてその電気伝導度の測定を行うとともにイオン交換反応によって Ag^+ を導入し、大腸菌および黄色ブドウ球菌に対する抗菌特性を調べた。導入した Ag^+ 量に対する大腸菌および黄色ブドウ球菌の死滅半径をプロットしたものを図7に示す。 Ag^+ 導入量が増加するにつれて死滅半径が減少したが、これは導入量が多くなると Ag^+ がナノ粒子化して溶出しにくくなり大腸菌および黄色ブドウ球菌の死滅効果が低下したものと考えられた。

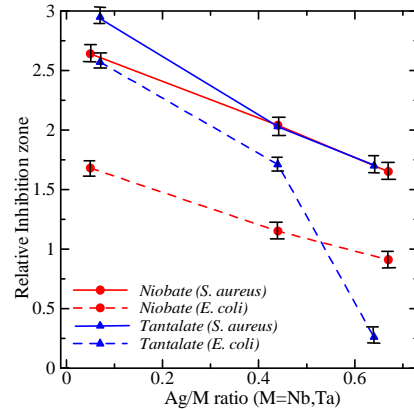


図7 大腸菌および黄色ブドウ球菌の死滅半径の銀濃度依存性

水熱反応によって合成される三種類のニオブ酸塩 (ペロプスカイト型、パイロクロア型、層状 $\text{K}_4\text{Nb}_6\text{O}_{17}$ 型) について合成時に Ag^+ をドーブし、その Ag^+ の配位環境を EXAFS を用いて明らかにするとともに紫外線照射下のフェノール分解に関する光触媒活性を調査した。層状 $\text{K}_4\text{Nb}_6\text{O}_{17}$ 型のニオブ酸塩が最も高い光触媒活性を示したが、これは層間に Ag^+ が存在することで電子の授受が容易になったことに起因すると考えられた。

新しいアルカリ金属ニオブおよびタンタルフッ化物の発見

AMO_3 ($\text{A} : \text{K}, \text{Rb}, \text{M} : \text{Nb}, \text{Ta}$) を出発物質としてフッ化水素水溶液を用いた水熱反応によって新しい化合物である ANaMF_7 を合成することができ、単結晶 X 線回折データを用いてその結晶構造を明らかにした(図8)。 Nb^{5+} および Ta^{5+} は F^- によって7配位されており、水熱合成時に KMnO_4 を添加することでこのサイト Mn^{4+} をドーブすることができた。この Mn^{4+} のドーブによって紫外線照射による赤色発光を示した。 $\text{KNaMF}_7:\text{Mn}^{4+}$ における励起および発光スペクトルを図9に示す。 $\text{RbNaMF}_7:\text{Mn}^{4+}$ の発光強度は $\text{KNaMF}_7:\text{Mn}^{4+}$ のそれと比べて低かった。

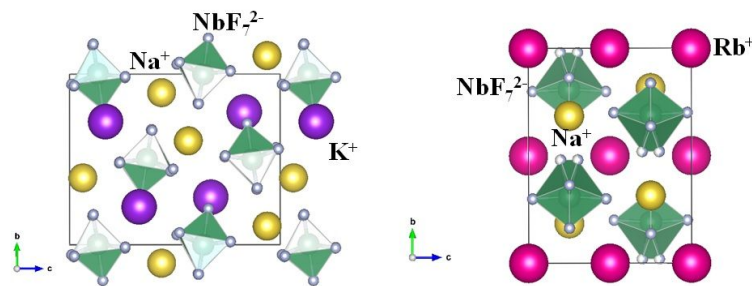


図8 KNaMF_7 (左)および RbNaMF_7 (右)の結晶構造

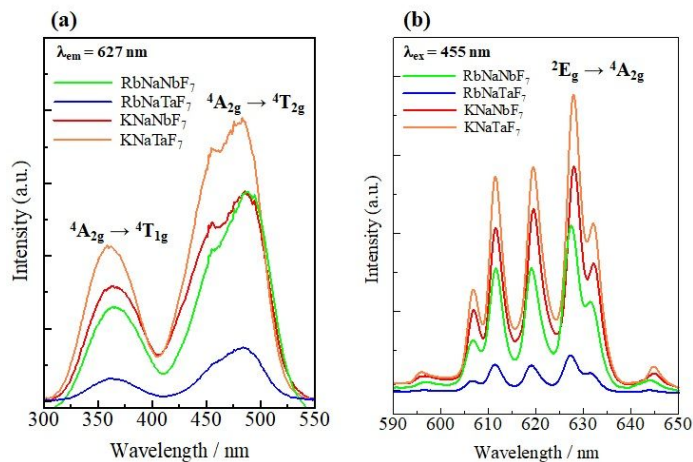


図9 ANaMF_7 ($\text{A}:\text{K}, \text{Rb}, \text{M}:\text{Nb}, \text{Ta}$)の励起スペクトル(a)および発光スペクトル(b)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計22件（うち査読付論文 22件／うち国際共著 3件／うちオープンアクセス 22件）

1. 著者名 Md. Mijanur Rahaman, Mirza H. K. Rubel, Md. Abdur Rashid, M. Ashraf Alamd Khandaker, Monower Hossaina, Md. Imran, Hossaina Anjuman AraKhatun, Md. Mukter Hossain, A. K. M. Azharul Islam, Seiji Kojima, Nobuhiro Kumada	4. 巻 6
2. 論文標題 Mechanical, electronic, optical, and thermodynamic properties of orthorhombic LiCuBiO4 crystal ; a first principles study	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Mater. Res. and Tech.	6. 最初と最後の頁 3783 ~ 3794
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jmrt.2019.06.039	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 該当する

1. 著者名 Nobuhiro Kumada, Sayaka Yanagida, Takahiro Takei, Akira Miura, Nobuki Itoi and Toshiki Goto	4. 巻 7
2. 論文標題 Hydrothermal Synthesis of $\text{KTi}_2(\text{PO}_4)_3$, $\alpha\text{-Zr}(\text{HP}_4)_2\text{H}_2\text{O}$ and $\text{g-TiPO}_4(\text{H}_2\text{PO}_4)_2\text{H}_2\text{O}$ from a lepidocrocite-type titanate	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Asian Ceram. Soc.	6. 最初と最後の頁 361 ~ 367
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/21870764.2019.1649041	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 Md Saiduzzaman, Yoshida Hikaru, Takahiro Takei, Sayaka Yanagida, Nobuhiro Kumada, Masanori Nagao, Hisanori Yamane, Masaki Azuma, Mirza H. K. Rubel, Chikako Moriyoshi, and Yoshihiro Kuroiwa	4. 巻 58
2. 論文標題 Hydrothermal Synthesis and Crystal Structure of a $\text{BKBO} (\text{Ba}_0.54\text{K}_0.46)_4\text{Bi}_4\text{O}_{12}$ Double Perovskite Superconductor with Onset of the Transition $T_c \sim 30$ K	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 11997 ~ 12001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.9b01768	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 M. Matsuda, S. E. Dissanayake, D. L. Abernathy, Y. Qiu, J. R. D. Copley, N. Kumada, and M. Azuma	4. 巻 100
2. 論文標題 Frustrated magnetic interactions in an $S=3/2$ bilayer honeycomb lattice compound $\text{Bi}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}(\text{NO}_3)$	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 134430
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.134430	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 該当する

1. 著者名 Md. Saiduzzaman, Sayaka Yanagida, Takahiro Takei, Nobuhiro Kumada	4. 巻 257
2. 論文標題 Hydrothermal Synthesis and Crystal Structure of A Fluorite-type Pb _{0.35} Bi _{0.65} O _{1.59} Compound with Photocatalytic Activity	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Mater. Lett.	6. 最初と最後の頁 126688
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.matlet.2019.126688	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 W. I. U. WITHANAGE, Nobuhiro Kumada, Takahiro Takei, Sayaka YANAGIDA, Kiyoharu Tadanaga, Akira Miura, Nataly Carolina Rosero-Navarro and Masaki Azuma	4. 巻 128
2. 論文標題 Electrical properties of pyrochlore-type silver tantalate and fluorite-type silver niobate	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Ceram. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 46 ~ 50
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.19139	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 Saiduzzaman Md, Yanagida Sayaka, Takei Takahiro, Kumada Nobuhiro, Ogawa Kazuya, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Kawaguchi Shogo	4. 巻 57
2. 論文標題 Crystal Structure, Thermal Behavior, and Photocatalytic Activity of NaBiO ₃ · nH ₂ O	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 8903 ~ 8908
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b00799	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 WITHANAGE W. I. U., YANAGIDA Sayaka, TAKEI Takahiro, KUMADA Nobuhiro	4. 巻 126
2. 論文標題 Hydrothermal doping of Ag into three types of potassium niobates	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 784 ~ 788
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.18065	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 YAMAMOTO Yo, WITHANAGE Withanage Isuru Uakara, TAKEI Takahiro, YANAGIDA Sayaka, KUMADA Nobuhiro, YAMANE Hisanori	4. 巻 126
2. 論文標題 Hydrothermal reaction of NaBiO ₃ · nH ₂ O with transition-metal (Co, Ni, Cu) salts	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1005 ~ 1012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.18052	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 Saiduzzaman Md, Takei Takahiro, Yanagida Sayaka, Kumada Nobuhiro, Das Hena, Kyokane Hirokazu, Wakazaki Shogo, Azuma Masaki, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro	4. 巻 58
2. 論文標題 Hydrothermal Synthesis of Pyrochlore-Type Pentavalent Bismuthates Ca ₂ Bi ₂ O ₇ and Sr ₂ Bi ₂ O ₇	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 1759 ~ 1763
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b03596	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 Rubel Mirza H.K., Mozahar Ali M., Ali M.S., Parvin R., Rahaman M.M., Hossain K.M., Hossain M.I., Islam A.K.M.A., Kumada N.	4. 巻 288
2. 論文標題 First principles study: Structural, mechanical, electronic and thermodynamic properties of simple cubic perovskite (Ba _{0.62} K _{0.38})(Bi _{0.92} Mg _{0.08})O ₃	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Solid State Communications	6. 最初と最後の頁 22 ~ 27
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ssc.2018.11.008	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 該当する

1. 著者名 Kumada N., Yanagida S., Takei T., Hong B.	4. 巻 115
2. 論文標題 Hydrothermal synthesis and crystal structure of new red phosphors, KNaMF ₇ :Mn ⁴⁺ (M: Nb, Ta)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Materials Research Bulletin	6. 最初と最後の頁 170 ~ 175
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.materresbull.2019.02.023	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 Saiduzzaman Md, Yanagida Sayaka, Takei Takahiro, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Kumada Nobuhiro	4. 巻 2
2. 論文標題 Hydrothermal Synthesis, Crystal Structure, and Visible-Region Photocatalytic Activity of BaBi2O6	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ChemistrySelect	6. 最初と最後の頁 4843 ~ 4846
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/slct.201700973	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 Isuru Withanage, Nobuhiro Kumada, Sayaka Yanagida, Takahiro Takei, Chikako Moriyoshi, Yoshihiro Kuroiwa	4. 巻 125
2. 論文標題 Synthesis and crystal structure of pyrochlore-type silver niobate and tantalate	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Ceram. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 776 - 778
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.17063	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 Saiduzzaman Md, Akutsu Shuhei, Kumada Nobuhiro, Takei Takahiro, Yanagida Sayaka, Yamane Hisanori, Kusano Yoshihiro	4. 巻 59
2. 論文標題 Hydrothermal Synthesis and Crystal Structure of a Mixed-Valence Bismuthate, Na3Bi3O8	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 4950 ~ 4960
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.0c00213	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 SAIDUZZAMAN Md, HOSSAIN Khandaker Monower, KUMADA Nobuhiro, YANAGIDA Sayaka, TAKEI Takahiro, HANADA Yuji, NAGAO Masanori, AZUMA Masaki	4. 巻 128
2. 論文標題 Hydrothermal synthesis and crystal structure of a mixed-valence pyrochlore-type strontium bismuthate, (Sr0.75Bi0.25)2Bi2O6.83	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 660 ~ 663
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.20115	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 SAIDUZZAMAN Md, TSUCHIOKA Nami, NORITAKE Fumiya, KUMADA Nobuhiro, TAKEI Takahiro	4. 巻 129
2. 論文標題 Photocatalytic activity of RB2O4N03 (R: Tb, Dy, Er, Gd, and Ho) for phenol degradation under visible light irradiation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 181 ~ 186
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.20210	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 Saiduzzaman Md, Takei Takahiro, Kumada Nobuhiro	4. 巻 8
2. 論文標題 Hydrothermal magic for the synthesis of new bismuth oxides	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry Frontiers	6. 最初と最後の頁 2918 ~ 2938
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1QI00337B	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 Hossain Khandaker Monower, Saiduzzaman Md, Kumada Nobuhiro, Takei Takahiro, Yamane Hisanori, Kabir Rubel Mirza Humaun	4. 巻 6
2. 論文標題 Hydrothermal Synthesis and Crystal Structure of a Novel Bismuth Oxide: (K0.2Sr0.8)(Na0.01Ca0.25Bi0.74)O3	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 15975 ~ 15980
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.1c01694	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 Isuru Udakara Withanage Withanage, Ariyapala Kuda Durayalage Sulasa Devi, Kumada Nobuhiro, Takei Takahiro, Ueda Mayu, Aizawa Mamoru	4. 巻 10
2. 論文標題 Controllable antimicrobial properties of silver ion-exchanged niobate and tantalate compounds	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Asian Ceramic Societies	6. 最初と最後の頁 49 ~ 57
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/21870764.2021.2006877	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 KUMADA Nobuhiro, TAKEI Takahiro	4. 巻 130
2. 論文標題 Hydrothermal synthesis and crystal structure of a new rubidium sodium niobium fluoride, RbNaNbF7	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 232 ~ 235
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.21147	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 Hossain Khandaker Monower, Saiduzzaman Md, Kumada Nobuhiro, Takei Takahiro, Yamane Hisanori	4. 巻 46
2. 論文標題 Hydrothermal synthesis and crystal structure of a novel double-perovskite-type bismuth oxide with 3:1 ordering at the B-site	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 New Journal of Chemistry	6. 最初と最後の頁 3595 ~ 3601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1NJ05648D	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10件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Isuru Withanage, Nobuhiro Kumada, Sayaka Yanagida, Takahiro Takei, Mayu Ueda, Mamoru Aizawa
2. 発表標題 Antibacterial and photocatalytic properties of silver niobate and silver tantalate
3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 阿久津修平・M. Saiduzzaman・武井貴弘・柳田さやか・熊田伸弘・山根久典・草野圭弘
2. 発表標題 水熱合成による新しいピスマス酸化物Na ₃ Bi ₃ O ₈ の合成と特性評価
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 2020年

1. 発表者名 米山 悠聖・武井 貴弘・柳田 さやか・中野目 滉介・熊田 伸弘
2. 発表標題 廃ガラスを用いた Ba ₂ TiSi ₂ O ₈ の水熱合成
3. 学会等名 日本セラミックス協会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Isuru Withanage, Sayaka Yanagida, Takahiro Takei, Nobuhiro Kumada
2. 発表標題 Photocatalytic activity of transition metal doped potassium niobate
3. 学会等名 第7回JACI/GSCシンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 阿久津 修平, 熊田 伸弘, 柳田 さやか, 武井 貴弘, 山根 久典, 草野 圭弘
2. 発表標題 水熱合成による新しいピスマス酸ナトリウムの合成と特性評価
3. 学会等名 日本セラミックス協会2018年秋季シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Isuru Withanage, Sayaka Yanagida, Takahiro Takei, Nobuhiro Kumada
2. 発表標題 Preparation and Photocatalytic Properties of Potassium Niobates
3. 学会等名 ICIE2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 N. Kumada
2. 発表標題 Hydrothermal Synthesis of New Bismuthates
3. 学会等名 STAC-10 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Md Saiduzzaman, N. Kumada, T. Takei, S. Yanagida
2. 発表標題 Hydrothermal Synthesis and Visible Region Photocatalytic Activity of New Pentavalent Bismuthates
3. 学会等名 STAC-10 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 I. WITHANAGE, N. KUMADA, T. TAKEI, S. YANAGIDA
2. 発表標題 Synthesis and crystal structure of pyrochlore-type silver niobate and tantalate
3. 学会等名 STAC-10 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Isuru Withanage, Nobuhiro Kumada, Sayaka Yanagida, Takahiro Takei
2. 発表標題 Preparation and photocatalytic properties of pyrochlore-type AgM_3O_7 (M = Nb, Ta)
3. 学会等名 ECers2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Nobuhiro Kumada	4. 発行年 2017年
2. 出版社 Wiley-VCH	5. 総ページ数 13
3. 書名 Handbook of Solid State Chemistry Volume 2	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>ソフト化学的手法を用いた結晶構造制御に関する研究 https://www.inorg.yamanashi.ac.jp/research/17</p>
--

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	武井 貴弘 (Takei Takahiro) (50324182)	山梨大学・大学院総合研究部・教授 (13501)	
研究分担者	柳田 さやか (Yanagida Sayaka) (40579794)	山梨大学・大学院総合研究部・助教 (13501)	

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
---------	---------

Bangladesh	University of Rajshahi			
米国	Oak Ridge National Laboratory			