

令和 2 年 6 月 4 日現在

機関番号：13601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14809

研究課題名（和文）フラックス法による酸化物結晶育成技術の深耕と大型光電極作製への挑戦

研究課題名（英文）Development of flux growth technique for oxide crystals and challenge to fabrication of large-sized photoelectrodes

研究代表者

鈴木 清香（Suzuki, Sayaka）

信州大学・学術研究院工学系・助教

研究者番号：40790308

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：Na₂MoO₄フラックス冷却法により、ミリメートルサイズの板状NaTaO₃結晶を育成できた。この結晶を用いて、NaTaO₃結晶の更なる大型化および窒化によるTa₃N₅への変換に取り組んだ。特定の結晶面が発達した板状NaTaO₃結晶を窒化することで、NaTaO₃からTa₃N₅への変換に関する結晶学的な新規知見を得た。また、種々の育成条件を変更した結晶育成実験およびフラックスに対するNaTaO₃溶解度の測定から、NaTaO₃結晶の大型化のための指針を導出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

NaTaO₃は紫外光応答型光触媒としてよく知られるが、その用途から小型粒子の合成が多数であり、大型結晶の育成は目指されていなかった。本研究ではこれまでに報告されている中では最大サイズのNaTaO₃結晶を育成できた。また、育成条件の変更によって、さまざまな形状のNaTaO₃結晶が生成することも初めてわかった。さらに、NaTaO₃を窒化するとエピタキシャル関係に類似する関係をもってTa₃N₅に変化することが明らかになった。これは、大型のNaTaO₃単結晶を利用したために明らかとなった。このように、NaTaO₃およびNaTaO₃から変換したTa₃N₅に関する結晶成長に関する新規知見が多数得られた。

研究成果の概要（英文）：Millimeter-sized plate-like NaTaO₃ crystals were successfully grown by Na₂MoO₄ flux cooling method. Using this NaTaO₃ crystals, growth of larger NaTaO₃ crystals and conversion of NaTaO₃ to Ta₃N₅ were attempted. Because plate-like NaTaO₃ crystals with well-developed specific faces were used, new crystallographic findings on the conversion of NaTaO₃ to Ta₃N₅ were obtained. Moreover, a guide to grow the large-sized NaTaO₃ crystals was proposed via crystal growth experiments with various growth conditions and measurements of NaTaO₃ solubility in the flux.

研究分野：無機工業材料

キーワード：フラックス 溶液法 結晶成長 酸化物 窒化物 光触媒

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

エネルギー資源である石油および石炭などは、枯渇性のエネルギーであることや偏在していることが課題である。燃料電池やタービンなどのエネルギーおよび化学物質の原料として重要な役割を担う水素は、主に石油や石炭などの枯渇性エネルギーから製造され、今後は新規合成手法が必須になると考える。太陽光エネルギーは日射量に左右されるものの、無尽蔵でクリーンな自然エネルギーである。1967年の本多-藤嶋効果の発見以降は、光照射下で水を分解して水素と酸素を生成する光触媒の研究が活発である。

近年では、光触媒粉末ではなく、集電極に光触媒粉末を塗布した光電極が研究・開発されている。この光電極シートは、ガラス基板上に光触媒粉末を塗布し、その上に導電層を蒸着した後、導電層および光触媒層を剥離する粒子転写法にて主に作製される。ただし、粒子転写法は製造プロセスが多く、光電極の面積化も難しい。

研究代表者らは、独自手法としてフラックスコーティング法による酸化物、フッ化物、窒化物および硫化物結晶層の作製を提案・実現してきた。フラックス法は、高温で融解しているフラックス(溶媒)に溶質を溶解させ、徐冷や蒸発による過飽和の増加を利用して結晶を育成する方法である。一般的には、るつぼの中に溶質とフラックスを充填して加熱することで結晶粉末を得る。一方、フラックスコーティング法はフラックス法を薄膜作製に展開した手法であり、溶質とフラックスを所望の基板上に塗布して加熱することで結晶層を得る。特に、可視光応答光触媒 Ta_3N_5 結晶層 / Ta 集電極の作製では、Ta 基板表面に $NaCl-Na_2CO_3$ を塗布し、 NH_3 気流下で加熱するだけの単純なプロセスで、平坦な結晶面で囲まれた高品質な Ta_3N_5 結晶から成る結晶層が得られた。製法の単純さが魅力であるが、面積化を考慮すると実際の実験系との乖離が大きく、課題が多い状況であった。

2. 研究の目的

本研究では光電極の大型化を見据え、Si 単結晶製造に倣った光電極用大型結晶の育成を提案する。これまでに当研究室では、フラックス法にてサブ μm から cm サイズの高品質な酸化物結晶を、その物質の融点よりもはるかに低い温度で育成してきた。本研究では、フラックス法による結晶育成に注力し、まず、大型の酸化物結晶の育成を図る。フラックス法は溶液法の一つであり、融液法と比べると得られる結晶は小さい。当研究室のこれまでの実績でも、cm オーダーの結晶育成は難しい。そこで、Top Seeded Flux Growth(TSFG)法を開発する。TSFG 法はフラックス法を導入した引き上げ法であり、融液法ではチョクラルスキー法に該当する。種子結晶から目的の酸化物結晶をホモあるいはヘテロエピタキシャル成長させ、大型化を目指す。一般的に、酸化物はバンドギャップが大きく可視光にตอบสนองしないため、太陽光では水を光触媒分解できない。したがって、TSFG 法で得た大型の酸化物結晶を窒化(NH_3 気流下で加熱)することで、可視光応答性の(酸)窒化物に変換する。この(酸)窒化物結晶に集電極となる金属を堆積すれば光電極を作製できる。

本研究では大型光電極の作製を達成するために、フラックス法による大型結晶育成を中心に、以下の目標に従って推進した。なお、本研究では、大型化する酸化物結晶として、紫外光応答型光触媒としてよく知られる $NaTaO_3$ を選択した。 $NaTaO_3$ は、窒化することで可視光応答型光触媒 Ta_3N_5 に変換できることがわかっている。

(1) mm 級の酸化物結晶のフラックス育成：フラックス法では数百 nm から数百 μm の酸化物結晶粒子の育成を得意とする。本研究で目指す mm~cm 級の結晶を育成するには、フラックス結晶育成条件の精緻な制御が必要である。具体的には、フラックス種や温度条件等の選択指針を導出しなければならない。フラックス法の特長は平坦な結晶面で囲まれた自形結晶を育成できることである。この自形結晶はエピタキシャル成長の種子結晶としても最適である。

(2) フラックス育成結晶の大型化を目指したエピタキシャル成長：(1)で作製した種子結晶を用いたホモエピタキシャル成長による結晶の大型化、ならびに別の結晶構造をもつ酸化物単結晶基板からのヘテロエピタキシャル成長による大型結晶の育成を試みる。

(3) 酸化物結晶の窒化による可視光応答性：研究代表者らは $NaTaO_3$ を窒化することで可視光応答光触媒 Ta_3N_5 に変換できることを初めて報告した。しかし、 $NaTaO_3$ を含めた酸化物の窒化機構は未だ不明である。(1)や(2)で得られた単結晶を窒化することで、窒化機構・挙動の解明の新しい知見が得られると期待する。

3. 研究の方法

(1) $NaTaO_3$ 結晶育成のためのフラックスの選択

フラックス選択のルールは構築されておらず、過去の育成例や経験を頼りにフラックスが選択されることがほとんどである。しかし、酸化物結晶に対しては、結晶科学的知見を利用してフラックスを選択する方法(『フラックスの選択指針』)が報告されている。本研究では、フラックスの選択指針に従って $NaTaO_3$ 結晶の育成に適したフラックスを抽出し、その中から経験や物性を基にフラックスを選択した。

(1) $NaTaO_3$ 結晶のフラックス育成

溶質として市販試薬の Na_2CO_3 および Ta_2O_5 粉末を、フラックスとして $Na_2Mo_xO_{3x+1}$ ($x = 1 \sim 3$) 粉末を用いた。 $x = 1$ である Na_2MoO_4 の場合、市販の $Na_2MoO_4 \cdot 2H_2O$ を用い、 $x = 2$ および 3 の $Na_2Mo_2O_7$

および $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ は固相法で合成した。所定の溶質濃度になるよう溶質およびフラックスの粉末試薬を秤量・乾式混合し、調合物を白金るつばに充填して、電気炉にて加熱した。室温まで冷却した後、残存するフラックスを温水で溶解除去し、結晶を分離した。

(1) フラックスに対する NaTaO_3 溶解度の測定

まず、市販試薬の Na_2CO_3 および Ta_2O_5 を用いて、固相法にて NaTaO_3 粉末を合成した。その粉末を成型および焼結し、 NaTaO_3 ペレットとした。 Na_2MoO_4 融液に NaTaO_3 ペレットを浸漬し、浸漬前後でのペレット重量を測定して NaTaO_3 の溶解度を算出した。

(2) TSFG 法による NaTaO_3 結晶の大型化(ホモエピタキシャル成長)

(1) で得られた mm 級 NaTaO_3 結晶を種子結晶として用い、結晶の大型化を試みた。溶質として Na_2CO_3 および Ta_2O_5 粉末を、フラックスとして $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 粉末を白金るつばに充填し、引き上げ炉の底部に設置した。引き上げ炉が所定の温度に到達した後、上部のシード棒に取り付けた種子結晶を白金るつば内の溶液に浸漬し、徐冷した。徐冷終了後、溶液が固化しない温度にて種子結晶を引き上げた。種子結晶に付着したフラックスを温水で溶解除去し、結晶を分離した。

(2) NaTaO_3 結晶のヘテロエピタキシャル成長

$\text{SrTiO}_3(100)$ 単結晶基板表面にスパッタリング法で Ta 薄膜を成膜した。次に、紫外光を照射した親水化 Ta 薄膜表面に Na_2CO_3 および NaCl の混合水溶液を塗布して乾燥した。乾燥後、 NH_3 雰囲気にて 700 で加熱し、保持せずに炉内で放冷した。

(3) mm 級 NaTaO_3 結晶の窒化

(1) で得られた mm 級 NaTaO_3 結晶を NH_3 気流中で加熱することで Ta_3N_5 に窒化した。

4. 研究成果

(1) NaTaO_3 結晶育成のためのフラックスの選択

フラックスの選択指針に従って NaTaO_3 結晶の育成に適したフラックスを抽出した。その結果、 MoO_3 、 Sb_2O_3 、 TeO_2 、 PbO_2 および NaF が候補となった。 NaF は、高温での結晶育成では白金るつばを汚染する可能性が高い。 Sb_2O_3 および TeO_2 は水への溶解度が低く、高価である。 PbO_2 は、環境負荷や人体への毒性を考慮すると不適である。 MoO_3 は水への溶解度は低いが、両性酸化物であるため、 Na_2O と容易に反応する。 $\text{Na}_2\text{O}:\text{MoO}_3 = 1:1$ (モル比) の Na_2MoO_4 は水に易溶である。目的結晶である NaTaO_3 と陽イオンが共通 (Na^+) であるため、不純物生成の可能性が低い。融点は 687 と比較的 low、1500 程度の高温でも分解および蒸発しない。

さらに、過去の酸化物結晶のフラックス育成例を調査すると、 K_2MoO_4 フラックスから $\text{K}_4\text{Nb}_6\text{O}_{17}$ 結晶が、 $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ フラックスから MgNb_2O_6 および $\text{Na}_2\text{Ta}_4\text{O}_{11}$ 結晶が育成されている。これらのモリブデン酸塩フラックスから育成された結晶はいずれも mm サイズであり、比較的大型である。

以上より、本研究では主に Na_2MoO_4 をフラックスとして用いて NaTaO_3 結晶を育成した。比較として、 $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ および $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ もフラックスとして用いた。

(1) NaTaO_3 結晶のフラックス育成

まず、 Na_2MoO_4 、 $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ または $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ フラックスから、保持温度 1100、溶質濃度 10 および 50 mol% にて結晶を育成した。 Na_2MoO_4 フラックスからは、いずれの溶質濃度でも NaTaO_3 が単一相で得られた。一方、 $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ および $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ フラックスからは、 NaTaO_3 に加えて $\text{Na}_2\text{Ta}_4\text{O}_{11}$ が生成した。RIR 法にてその生成割合を算出したところ、溶質濃度 50 よりも 10 mol% の場合のほうが $\text{Na}_2\text{Ta}_4\text{O}_{11}$ の生成割合が多かった。 $\text{Na}_2\text{Ta}_4\text{O}_{11}$ が生成した要因は、溶質の Na_2O がフラックスの $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ や $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ と反応し、 NaTaO_3 が生成するための Na_2O が不足したためと考える。実際に、 $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ フラックスから 10 mol% で育成した場合、フラックス溶解除去前の試料を XRD 分析すると、 $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ の回折線が観測された。 $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ や $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ が溶質として加えた Na_2O と反応し、 Na/Mo 比が大きいモリブデン酸塩 (Na_2MoO_4 や $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$) が晶出したと考える。

次に、フラックスを Na_2MoO_4 に固定し、溶質濃度 10 および 50 mol%、保持温度 1300、冷却速度 $150 \cdot \text{h}^{-1}$ にて結晶を育成した。いずれの溶質濃度においても、 NaTaO_3 が単一相で得られ、その平均粒径は 10 μm 程度であった。保持温度を 1500 に変更すると、溶質濃度 10 mol% のとき、平均粒径が 30 μm 程度の切頂六面体に加えて、 $0.7 \times 1 \text{ mm}$ 程度の板状結晶がわずかに得られた。保持温度を増大したことで、フラックスへの溶質の溶解度が増加し、結晶が大型化したと考える。更なる大型化を図るために、1500 から 1300 までの冷却速度を $5 \cdot \text{h}^{-1}$ に変更した。その結果、板状結晶のサイズや生成割合が増加した。また、溶質濃度に依存して、骸晶、板状結晶および直方体結晶の 3 種類の形状の結晶が得られた。溶質濃度 1 mol% で育成した結晶の多くは骸晶であり、粒径は約 1 mm であった。溶質濃度 5 mol% では、主に数 mm の板状結晶が生成し、骸晶や数十 μm の直方体結晶も生成した。また、最大で、 $8.0 \times 4.7 \times 0.04 \text{ mm}$ の板状結晶が得られた(図 1)。溶質濃度 10 mol% のとき、骸晶は生成せず、板状結晶および

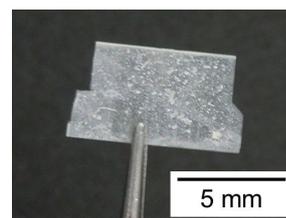


図 1 板状 NaTaO_3 結晶

直方体結晶が生成した。50 mol%では、mmサイズの結晶は得られず、20 μm 程度の直方体結晶が得られた。このように、溶質濃度の増加に伴って、骸晶、板状結晶、直方体結晶へと生成割合が増加した。この結晶形状やサイズの変化は、溶質濃度の増加に伴って核成長時の過飽和度が低下したためと考える。また、骸晶の生成はベルグ効果に因ると考える。

板状結晶1枚をXRDおよびTEMにて分析した。板状結晶1枚を粉砕せずにXRD分析すると、 $2\theta = 22.9, 46.6$ および 72.8° 付近のみに回折線が観測され、配向が見られた。NaTaO₃は直方晶系に属し、格子定数は $a = 5.513, b = 7.750, c = 5.494 \text{ \AA}$ である。この格子定数および結晶構造から、[010]、[10-1]および[101]方向の格子面間隔はほぼ等しく、XRDのみからでは板状結晶の面指数を決定できない。そこで、TEM分析を実施した。FIB加工にて板状NaTaO₃結晶の長辺方向に対して平行および垂直に試料片を切り出し、電子回折パターンを観察した。その結果、板状結晶の発達面は(010)面であり、板状結晶の長辺に平行な面が(10-1)面、垂直な面が(101)面であることがわかった(図2)。格子定数を考慮すると、板状成長は特異である。

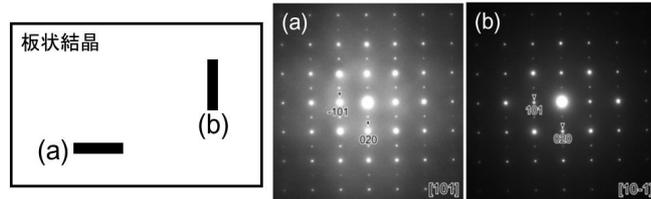


図2 板状NaTaO₃結晶の電子回折パターン

(1) フラックスに対するNaTaO₃溶解度の測定

加熱温度が高いほど、溶解度は増加した。1300、1400および1500における溶解度は、それぞれ0.39、0.77および2.2 mol%であった。1100におけるNa₂Mo₂O₇に対するMgNb₂O₆およびNa₂Ta₄O₁₁の溶解度がそれぞれ12.4および1.32 mol%と報告されている。これらと比較すると、Na₂Mo₄に対するNaTaO₃の溶解度は低い。(1)の実験において、冷却速度および冷却温度区間などを変更し、本報告書に記載以外の条件でも結晶を育成したが、 $8.0 \times 4.7 \times 0.04 \text{ mm}$ を超える大型結晶は得られなかった。溶解度測定の結果から、その一因は溶解度の低さであると考えられる。また、(3)に後述のとおり、NaTaO₃結晶育成時にCaOの混入が認められた。1100におけるNa₂Mo₄に対するCaMoO₄の溶解度は37.5 mol%と報告されている。Na₂Mo₄フラックス中にCaOが溶解した分、NaTaO₃の溶解度が減少した可能性があると考えられる。正確に溶解度を算出するためには、不純物を完全に除去した系で測定する必要がある、今後の課題である。

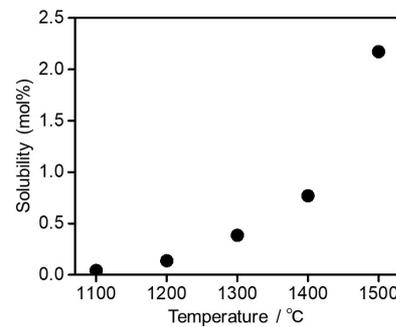


図3 Na₂Mo₄に対するNaTaO₃の溶解度

溶解度測定結果から、1400と1500の間で溶解度が大きく変化していることが読み取れる。このことから、Na₂Mo₄フラックスから保持温度1500にてNaTaO₃結晶を育成する場合、溶質濃度を2.2 mol%より若干高くし、1500から1400の範囲を徐冷すれば結晶が大型化すると考察できる。

(2) TSFG法によるNaTaO₃結晶の大型化(ホモエピタキシャル成長)

予備実験から、徐冷する温度範囲を1400から1375と決定した。また、この温度範囲では、結晶核生成よりも結晶成長を優先的に起こすために徐冷速度を $0.5 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{h}^{-1}$ に設定した。初期の種子結晶の重量は16.7519 mgであったのに対し、TSFG後は18.6559 mgであり、11.3 wt%増加した。TSFG後の結晶を顕微鏡にて観察すると、結晶表面に微結晶の付着は観察されなかった。したがって、種子結晶の成長(すなわちホモエピタキシャル成長)が進行したと考える。

(2) NaTaO₃結晶のヘテロエピタキシャル成長

NaTaO₃のTa源であるTa薄膜の膜厚が60 nmの場合、(10-1)配向した直方晶NaTaO₃結晶層が得られた。しかし、その結晶層の上には、NaTaO₃粒子が観察された。また、基板垂直方向に対してNaTaO₃の(10-1)面が配向していたが、面内方向には2種類の配向が存在し、場所によって結晶方位が 90° 異なるドメインが存在した。一方、原料のTa薄膜の膜厚を30 nmに減少すると、雑晶の少ない薄膜状の直方晶NaTaO₃結晶層が得られた(図4)。NaTaO₃結晶層の膜厚は約90 nmであった。XRD分析では、SrTiO₃{100}回折線の高角側にNaTaO₃の{10-1}面に由来する回折線が観測された。広域逆格子マップ測定の結果から、NaTaO₃結晶の面内配向は1種類であることがわかった。また、高速逆格子マップ測定の結果から、生成したNaTaO₃結晶の面内方向の格子面間隔が文献値よりも大きいことがわかった。これは、

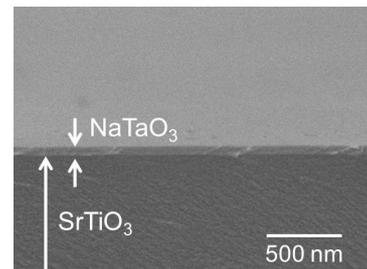


図4 NaTaO₃/SrTiO₃の断面像

SrTiO₃の格子面間隔の影響を受けて NaTaO₃ 結晶の格子面間隔が広がったためと考える。

(3) mm 級 NaTaO₃ 結晶の窒化

Na₂MoO₄ フラックスから育成した(010)面の発達した板状 NaTaO₃ 結晶を 850 °C で 1 h 窒化した。窒化後の結晶を観察すると、窒化が進んでいない箇所が見られた。光学顕微鏡で観察すると、NaTaO₃ 結晶の表面に不純物粒子が観察され、不純物粒子が付着した箇所では窒化が進行しなかったことがわかった。この不純物粒子は、XRD および EDS 分析から、CaMoO₄ であると同定した。Ca の混入原因はさまざま調査したが不明である。NaTaO₃ 結晶育成時に電気炉等から CaO が混入し、フラックスの Mo 成分と反応して生成したと考える。NaTaO₃ 結晶育成時の不純物生成を抑制できなかったため、窒化前に HF を用いて NaTaO₃ 結晶の表面を溶解した。HF 処理することで不純物粒子を除去でき、結晶表面に数十 μm の長方形のエッチピットが観察された。HF 処理した NaTaO₃ 結晶を窒化すると、結晶表面全体が無色透明から赤色透明に変化した(図 5 左)。断面観察および XRD 分析から、NaTaO₃ 結晶表面に 1 μm 程度の Ta₃N₅ 結晶層が均一に生成したことを確認した(図 5 右)。また、XRD 分析では、Ta₃N₅(010)面の配向が観測された。NaTaO₃(010)面および Ta₃N₅(010)面の原子配列および原子間距離を考慮すると、エピタキシャル成長に類似する関係をもって、NaTaO₃ 結晶の一部が Ta₃N₅ に変換されたと考察する。

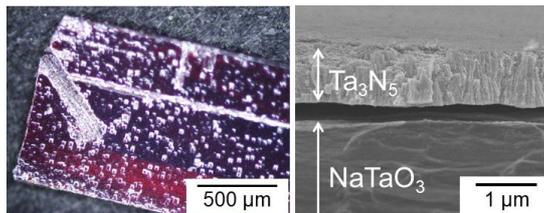


図 5 板状 NaTaO₃ 窒化後の Ta₃N₅/NaTaO₃

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 0件）

1. 著者名 Sayaka Suzuki, Haruka Saito, Kunio Yubuta, Shuji Oishi, Katsuya Teshima	4. 巻 19
2. 論文標題 Growth of Millimeter-sized Platy Single Crystals of NaTaO ₃ from Na ₂ MoO ₄ Flux	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 3607 ~ 3611
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.9b00526	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 Shunsuke Ayuzawa, Sayaka Suzuki, Miki Hidaka, Shuji Oishi, Katsuya Teshima	4. 巻 19
2. 論文標題 Epitaxial Growth of Ruby Crystal Films on Sapphire Crystal Substrates and Solubility of Aluminum Oxide in Molybdenum Trioxide Flux	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 4095 ~ 4100
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.9b00483	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 Shunsuke Ayuzawa, Sayaka Suzuki, Miki Hidaka, Shuji Oishi, Katsuya Teshima	4. 巻 20
2. 論文標題 Effect of Holding Temperature on Growth of Ruby Crystal Films via Molybdenum Trioxide Flux Evaporation? Solubility of Aluminum Oxide, Growth Rate, and Material Balance	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 2019 ~ 2026
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.9b01674	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 Shunsuke Ayuzawa, Sayaka Suzuki, Miki Hidaka, Tetsuya Yamada, Shuji Oishi, Katsuya Teshima	4. 巻 20
2. 論文標題 Role of Na ₂ CO ₃ Addition in Epitaxial Growth of Ruby Crystal Films on Sapphire Crystal Substrates via MoO ₃ Flux Evaporation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 4157 ~ 4163
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.0c00425	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 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 鈴木清香, 鮎沢俊輔, 大石修治, 手嶋勝弥
2. 発表標題 フラックス法によるルビー-薄膜のエピタキシャル成長を利用した新規溶解度測定技術の提案
3. 学会等名 表面技術協会第140回講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 川島秀也, 鈴木清香, 手嶋勝弥
2. 発表標題 塩化物フラックスの蒸発供給による可視光応答型光触媒BaNbO ₂ N 結晶層の作製と評価
3. 学会等名 表面技術協会第140回講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松井友作, 鈴木清香, 手嶋勝弥
2. 発表標題 Ta金属粒子からのTa ₃ N ₅ 結晶のKFフラックス育成
3. 学会等名 第14回日本フラックス成長研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木清香, 齋藤遼, 手嶋勝弥
2. 発表標題 NaTaO ₃ 結晶の表面処理による可視光応答型光触媒Ta ₃ N ₅ への窒化の促進
3. 学会等名 表面技術協会第139回講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木清香, 齋藤遼, 湯蓋邦夫, 手嶋勝弥
2. 発表標題 NaTaO ₃ 結晶のフラックス育成～大型化を目指したフラックスの選択～
3. 学会等名 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 安藤遼汰, 鈴木清香, 手嶋勝弥
2. 発表標題 塩化物-炭酸ナトリウム混合フラックスからのTa ₃ N ₅ 結晶の育成とその酸素生成活性の評価
3. 学会等名 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 鈴木清香, 安藤遼汰, 手嶋勝弥
2. 発表標題 可視光応答型光触媒Ta ₃ N ₅ 結晶のフラックス育成における高比表面積化と酸素生成活性評価
3. 学会等名 表面技術協会第138回講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木清香, 齋藤遼, 大石修治, 手嶋勝弥
2. 発表標題 フラックスおよび溶質のNaTaO ₃ 結晶サイズおよび結晶相への影響
3. 学会等名 第13回日本フラックス成長研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 齋藤遼, 鈴木清香, 湯蓋邦夫, 手嶋勝弥
2. 発表標題 板状NaTaO ₃ 結晶の窒化によるTa ₃ N ₅ 結晶の配向制御
3. 学会等名 第13回日本フラックス成長研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 齋藤遼, 鈴木清香, 湯蓋邦夫, 手嶋勝弥
2. 発表標題 Na ₂ MoO ₄ フラックスから育成したNaTaO ₃ 結晶における形状変化
3. 学会等名 第46回結晶成長国内会議
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木清香, 手嶋勝弥
2. 発表標題 フラックス結晶育成のタンタル系光触媒薄膜作製への展開
3. 学会等名 第46回結晶成長国内会議 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Haruka Saito, Sayaka Suzuki, Tetsuya Yamada, Katsuya Teshima
2. 発表標題 Effect of compositions of molybdate fluxes on crystalline phase in flux growth of NaTaO ₃ crystals
3. 学会等名 HyMaP2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Sayaka Suzuki, Katsuya Teshima
2. 発表標題 Flux growth and exfoliation of layered niobate crystals for photocatalytic application
3. 学会等名 HyMaP2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木清香, 伊瀬知克教, 安藤遼汰, 山田哲也, 手嶋勝弥
2. 発表標題 Ta3N5結晶のフラックス育成における生成結晶相および形状へのタンタル原料種の影響
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 鈴木清香, 齋藤遼, 手嶋勝弥
2. 発表標題 水分解用Ta3N5光電極の新規作製手法開発に向けた課題抽出
3. 学会等名 表面技術協会第136回講演大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔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
---------	---------------------------	-----------------------	----