

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)	氏名	坂田 拓也																				
学位授与の要件	学位規則第4条第1・2項該当																						
<p>論 文 題 目</p> <p>Development of Synthesis Methods for Ta-based Perovskite Oxynitride Pigments by Using Safe and Sustainable Materials and Processes</p> <p>(安全・持続可能な物質と手法を用いるタンタル系ペロブスカイト型酸窒化物顔料の合成法の開発)</p>																							
<p>論文審査担当者</p> <table border="0"> <tr> <td>主 査</td> <td>教 授</td> <td>片桐 清文</td> <td>印</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>教 授</td> <td>犬丸 啓</td> <td>印</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>教 授</td> <td>大山 陽介</td> <td>印</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>教 授</td> <td>萩 崇</td> <td>印</td> </tr> <tr> <td>審査委員</td> <td>助 教</td> <td>樽谷 直紀</td> <td>印</td> </tr> </table>				主 査	教 授	片桐 清文	印	審査委員	教 授	犬丸 啓	印	審査委員	教 授	大山 陽介	印	審査委員	教 授	萩 崇	印	審査委員	助 教	樽谷 直紀	印
主 査	教 授	片桐 清文	印																				
審査委員	教 授	犬丸 啓	印																				
審査委員	教 授	大山 陽介	印																				
審査委員	教 授	萩 崇	印																				
審査委員	助 教	樽谷 直紀	印																				
<p>〔論文審査の要旨〕</p> <p>本論文は、無機顔料への応用を意図したタンタル含有ペロブスカイト型酸窒化物の NH₃ フリー合成法の開発とその色彩制御に関する研究がまとめられた。ペロブスカイト型金属酸窒化物は、安全・安心な無機顔料の候補物質などとして注目を集めている。この論文では、前駆体として用いる金属酸化物の選定、固体窒素源として用いる尿素の量、さらには熱処理温度・時間などが酸窒化物の形成等に与える影響について、実験的に研究が実施された。本論文の各章の詳細は、以下のとおりである。</p> <p>第1章では、色材における無機顔料の背景、現状、課題が説明された。特に鉛などの重金属が健康に及ぼす影響と代替材料の必要性についての説明がなされ、その候補としての金属酸窒化物の位置づけと課題が述べられた。その上で、本研究の新規性と目的が述べられた。</p> <p>第2章では、橙色顔料として期待されるストロンチウム-タンタル酸窒化物をターゲットとし、NH₃ ガスを用いない、尿素を窒素源とした合成方法とその色彩制御について説明された。添加する尿素量によって、材料中のアニオン比 (O/N 比)、すなわち生成物のバンドギャップをチューニングでき、合成される SrTaO₂N と Sr_{1.4}Ta_{0.6}O_{2.9} の固溶体の色を黄から褐色まで制御できることが明らかにされた。さらに、単相で結晶性の高い生成物を得るためには、タンタル前駆体として結晶性の酸化タンタルよりもアルコキシド由来の非晶質の酸化タンタルゲルを用いる方が適していることが説明された。</p> <p>第3章では、ストロンチウム-タンタル酸窒化物の色のバリエーション拡大を目的とし、この系にチタンをドーブした SrTaO₂N-SrTiO₃ 固溶体について説明がなされた。前駆体に用いる金属残化物ゲルとして、Ta₂O₅ ゲルと TiO₂ ゲルを別々に合成して混合したものと、Ta アルコキシドと Ti アルコキシドを液相で混合し、共重合させた Ta-Ti 複合酸窒化物ゲルを比較し、SrTaO₂N</p>																							

—SrTiO₃ 固溶体を組成ムラなく得るためには後者を用いる必要があることが述べられた。さらに拡散反射スペクトルでは、材料中の Ti 量が多いほど、バンドギャップエネルギーは大きくなり、長波長域における反射は Ti⁴⁺の還元により減少していること、生成物の色は、Ti/Ta 比の調整により、橙色から黄緑色まで制御できることが説明された。

第 4 章では、黄色顔料としての応用が期待されるカルシウム-タンタル酸窒化物をターゲットとし、尿素を用いた合成方法とその色彩評価について説明された。前駆体として、Ca(OH)₂ と Ta₂O₅ ゲル、尿素を用いて、それらの仕込み比などの合成条件を最適化し、得られた生成物を純水と塩酸による洗浄で副生成物を除去することで、単相の酸窒化物が得られることが、NH₃ ガスを用いて合成される CaTaO₂N と比べて、生成物のバンドギャップは広く、色は鮮やかではなく、材料中の O/N 比が理想的な 2:1 ではなく、窒素量が不足していることが述べられた。そこで、カチオン側の電荷量を増やすことでアニオンにおける窒素の割合を増加させるために Ca サイトへ La をドーピングすることで既存の黄色無機顔料と同等の鮮やかな黄色を呈する CaTaO₂N-LaTaON₂ 固溶体の合成に成功したことが説明された。

第 5 章では、第 2 章から第 4 章を総括し、本論文の結言を述べている。

以上について審査した結果、これらの成果は学術的および技術的な貢献が十分にあり、本論文が博士（工学）の学位論文としての価値を有し、同著者は博士（工学）の学位を授与される資格があるものと認められる。

備考：審査の要旨は、1,500 字以内とする。