

二国間交流事業 共同研究報告書

令和5年4月3日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]

東京工業大学・理学院

[職・氏名]

教授・前田和彦

[課題番号]

JPJSBP 120213208

1. 事業名 相手国: フランス (振興会対応機関: MEAE-MESRI) との共同研究

2. 研究課題名

(和文) 酸窒化物を用いた二酸化炭素還元光触媒系の構築

(英文) Development of photocatalytic carbon dioxide reduction systems using oxynitrides

3. 共同研究実施期間 2021年4月1日 ~ 2023年3月31日 (2年0ヶ月)

【延長前】 年 月 日 ~ 年 月 日 (年 月 日)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

Universite de Rennes 1・CNRS Researcher・François Cheviré

5. 委託費総額(返還額を除く)

本事業により執行した委託費総額		1,900,000 円
内訳	1年度目執行経費	950,000 円
	2年度目執行経費	950,000 円
	3年度目執行経費	- 円

6. 共同研究実施期間を通じた参加者数(代表者を含む)

日本側参加者等	5名
相手国側参加者等	8名

* 参加者リスト(様式 B1(1))に表示される合計数を転記してください(途中で不参加となった方も含め、全ての期間で参加した通算の参加者数となります)。

7. 派遣・受入実績

	派遣		受入
	相手国	第三国	
1年度目	0	0	0(0)
2年度目	0	0	2(0)
3年度目			()

* 派遣・受入実績(様式 B1(3))に表示される合計数を転記してください。

派遣: 委託費を使用した日本側参加者等の相手国及び相手国以外への渡航実績(延べ人数)。

受入: 相手国側参加者等の来日実績(延べ人数)。カッコ内は委託費で滞在費等を負担した内数。

8. 研究交流の概要・成果等

(1)研究交流概要(全期間を通じた研究交流の目的・実施状況)

水分解や二酸化炭素還元の有効な光触媒系の性能を向上させるひとつの戦略は、光吸収により半導体光触媒内部に生成した電子と正孔を再結合せずに表面に移動させ、表面での触媒反応に効率的に利用することである。そのためには、新しい光触媒の探索に加えて、既存材料の改良(新規合成ルートの開拓)も重要となる。

研究開発の方向性について、2021年6月2日に、フランス側とオンライン研究会を実施し、お互いのグループの研究状況・計画の確認と合わせて議論を行った。その結果、従来想定していた酸窒化物に限定することなく、お互いのグループの強みを生かして広く複合アニオン化合物やその類縁物質の合成研究を加速させることで合意した。これは、実施計画書に記載した「原料や合成条件を精査することで、独自に開発してきた複合アニオン化合物の高品質化を図る」ことに対応する。

2021年度の具体的な成果として、酸フッ化物光触媒 $\text{Pb}_2\text{Ti}_2\text{O}_{5.4}\text{F}_{1.2}$ の新規合成法や酸窒化物光触媒の低温合成法を新たに見出したこと、そして新規層状酸フッ化物 $\text{Pb}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{F}_2$ が従来の PbFeO_2F よりも8倍高い水の酸化触媒能を示すことを見出したことが挙げられる。これらの成果については学会発表を複数回行い、ACS Appl. Mater. Interfaces 誌と Sustainable Energy & Fuels 誌に論文を発表した。

2022年度には、前年度の成果を発展させる形で、マイクロ波支援水熱法により酸フッ化物光触媒 $\text{Pb}_2\text{Ti}_2\text{O}_{5.4}\text{F}_{1.2}$ の光触媒活性を大幅に向上できることを見出し、また層状酸窒化物光触媒 $\text{K}_2\text{LaTa}_2\text{O}_6\text{N}$ の層間修飾を通じた高活性化も実現した。これらについては国内外での学会で発表を行い、論文も投稿中である。さらに2022年度には、フランス側の代表者 Cheviré 博士と彼の指導学生を東京工業大学へ招き、「Symposium on Materials Chemistry for New Properties and Functions」と題する国際シンポジウムを対面形式で開催した。関連する国内外の研究者10名以上にも参加を呼びかけ、活発な研究発表と討議が行われた。

本プロジェクトは、コロナ禍真っ只中での進行となったため、特に対面での研究発表や交流に困難を抱えることとなったが、ウェブミーティングの活用などを通じて概ね計画通りに研究計画を実施することができた。

(2)学術的価値(本研究交流により得られた新たな知見や概念の展開等、学術的成果)

複合アニオン材料の(光)触媒機能に関して、新しい知見を得ることができた。例えば、酸フッ化物光触媒 $\text{Pb}_2\text{Ti}_2\text{O}_{5.4}\text{F}_{1.2}$ の合成法はこれまで真空中での固相反応に限定されており、これが光触媒活性向上の妨げとなっていたが、本プロジェクトでは新規合成ルートを開拓することで最大で18倍の水素生成光触媒活性を実現した。また、物質の“次元性”が触媒機能に与える影響は酸化物ではよく知られていたが、酸フッ化物ではわかっていなかった。本プロジェクトでは、二次元層状酸フッ化物 $\text{Pb}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{F}_2$ が三次元の PbFeO_2F よりも水の酸化電極触媒として良好な性能を与えることを発見した。層状酸窒化物についても、 $\text{K}_2\text{LaTa}_2\text{O}_6\text{N}$ の層空間にインターカレートした有機分子を足場としてPt助触媒を高分散に担持し、材料の外表面だけでなく層空間も利用可能な高性能光触媒系を構築するなど、従来にない新たな光触媒設計法を見出すに至った。

(3)相手国との交流(両国の研究者が協力して学術交流することによって得られた成果)

フランス側の研究者は高度な無機材料合成の知見を有しており、ウェブミーティングや対面シンポジウムの際のディスカッションを通じてその知見が日本側に還元された。ここで得た示唆を元に上記のような研究展開が図られた。また、フランス側で合成された硫化物系材料の特性評価の一部を、日本側が得意とする電気化学測定や光触媒活性評価を通じて行うなど、両チームの強みを活かした展開も見られた。尚、本成果は現在共著論文としてまとめており、近い将来学術誌に投稿する予定である。

(4)社会的貢献(社会の基盤となる文化の継承と発展、社会生活の質の改善、現代的諸問題の克服と解決に資する等の社会的貢献はどのようにあったか)

複合アニオン化合物は、人工光合成技術を支える重要な要素である。今日人類的な課題となったエネルギー・環境問題の解決に向けた基礎技術の構築の観点からも、この分野が果たす社会的な役割は大きいと認められる。日本側代表者の前田は高校生を対象とした特別講義を 2021 年度と 2022 年度とで計 2 回行い、本分野の果たす本質的な役割や複合アニオン化合物の研究の面白さを若い世代に伝えてきた。このような視座において、一定の社会的貢献ができたものと考えている。

(5)若手研究者養成への貢献(若手研究者養成への取組、成果)

上述の通り、2022 年度に国際シンポジウムを開催し、日仏双方の若手研究者(助教、学生等)による研究発表と議論を行った。特に、本プロジェクトに参加した日本側学生が積極的に英語で質問するなど、コロナ禍で外部発表機会が少なかった世代の学生にとっては非常に有意義な機会となった。また、普段は触れない研究対象を知り、若手研究者自身のテーマの立ち位置や独自性を再認識する機会ともなった。

(6)将来発展可能性(本事業を実施したことにより、今後どのような発展の可能性が認められるか)

本プロジェクト終了後も、前田が代表を務める学術変革領域研究 A 等を通じて共同研究は継続している。2023 年度には、フランス側の学生 1 名を東京工業大学に受け入れ、共同で実験を行う計画である。

(7)その他(上記(2)～(6)以外に得られた成果があれば記載してください)

例:大学間協定の締結、他事業への展開、受賞など

日本側代表者の前田が 2021 年 Clarivate Analytics Highly Cited Researchers 2021 に選出され、2022 年 10 月には英国王立化学会フェロー(Fellow of the Royal Society of Chemistry: FRSC)にも選出された。