

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 14250 号
------	---------------

氏 名 小 椋 裕 介

論 文 題 目

アパタイト型希土類シリケートにおける酸素イオン伝導に及ぼすカチオン空孔の影響
(Effect of Cation Vacancies on Oxide-ion Conduction in Apatite-Type Rare-Earth Silicates)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	工学研究科	教授	松永 克志
委員	名古屋大学	工学研究科	教授	長谷川 正
委員	一般社団法人ファインセラミックセンター		主席研究員	桑原 彰秀
委員	名古屋大学	工学研究科	講師	横井 達矢

論文審査の結果の要旨

小椋裕介君提出の論文「アパタイト型希土類シリケートにおける酸素イオン伝導に及ぼすカチオン空孔の影響」は、固体電解質として実用されている酸化ジルコニウムに匹敵する酸素イオン伝導度を有することで注目されている、アパタイト型希土類シリケートにおける酸素イオン伝導機構の微視的因子を第一原理計算によって系統的に明らかにしている。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、アパタイト型希土類シリケートの酸素イオン伝導機構および材料探索に関する先行研究と第一原理計算手法について述べている。

第2章では、希土類イオンとしてランタン (La) を構成成分とするアパタイト型シリケート (LSO) について、同物質の酸素イオン伝導の活性化エネルギーに及ぼすLa組成の影響に関する結果を述べている。Laサイトの空孔濃度増加に伴い、酸素イオン伝導のポテンシャル障壁が高くなることを見出し、それが同結晶構造中の特徴的な原子配列に起因していることを明らかにしている。同物質の酸素イオン伝導の原子レベル機構を示す有用な知見である。

第3章では、Si空孔を含有するLSOにおける酸素イオン伝導機構に関する結果を述べている。Si空孔含有LSOにおいて高速拡散するキャリアは、格子間酸素イオンであることを明らかにしている。また、格子間酸素イオン拡散のポテンシャル障壁は実験結果ともよく対応しており、その障壁高さは、Si空孔を含まない場合と同様に、同結晶構造の特徴的な原子配列に起因していることを明らかにしている。Si空孔含有アパタイト型シリケートは、これまでその酸素イオン伝導機構は解明されておらず、本研究がそれを初めて示したという点で重要な知見である。

第4章では、ネオジウム (Nd) を希土類イオンとするアパタイト型シリケート (NSO) に着目し、異なる希土類イオンからなるシリケートにおける酸素イオン伝導機構に関する結果を述べている。NSOの酸素イオン伝導経路は、実験結果から推察されているものとは異なり、LSOと同様な経路に沿った場合にそのポテンシャル障壁が低く、その値は活性化エネルギーの実験値ともよく一致することを示している。そのポテンシャル障壁高さもLSOと同様に、特徴的な結晶構造に由来していることを見出し、NSOはLSOと同じ解釈が適用できることを明らかにしている。

第5章では、本研究の結論を与えている。

以上のように本論文では、第一原理計算を用いて、アパタイト型希土類シリケートの酸素イオン伝導機構に及ぼすカチオン空孔の影響を詳細に明らかにしている。これらの評価方法並びに得られた知見は、同物質の固体酸化物型燃料電池における固体電解質への応用を実現するために重要であり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である小椋裕介君は博士 (工学) の学位を受けるに十分な資格があると判断した。