

Title	Study of ion motion in solid electrolytes using terahertz time-domain spectroscopy
Author(s)	森本, 智英
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/72269
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

論文内容の要旨

氏 名 （ 森 本 智 英 ）	
論文題名	Study of ion motion in solid electrolytes using terahertz time-domain spectroscopy (テラヘルツ時間領域分光を用いた固体電解質におけるイオン運動の研究)
論文内容の要旨	
<p>環境に負荷をかけないエネルギー技術として、燃料電池が注目を集めている。その高性能化には、安定で高い伝導度を有する固体の電解質を開発することが重要である。この固体電解質における伝導現象は、酸素欠陥や水素などのイオンが電荷担体としてホッピングすることによる。このイオン伝導を制御するためには、イオンを添加することが必須であるが、同時に系に欠陥が生成されるなど複雑化を生じることになってしまう。このため、単なるマクロスケールの伝導特性評価のみでは、伝導現象のミクロな過程が解明できず、各種計算機シミュレーションによる推定が行われるのみであった。しかし、イオン伝導の詳細な解明やそれに基づくより高性能な固体電解質の開発には、物質固有のミクロな伝導を評価することが求められる。</p> <p>本論文では、伝導を担うイオンの熱振動が存在すると考えられるテラヘルツ周波数帯における伝導度を測定し、その温度変化からミクロなイオン伝導過程を実験的に評価することを行った。まず、対象としてイットリウムにより安定化されたジルコニアを取り上げた。その結果を非調和ポテンシャルによってうまく説明するとともに、ホッピングに関係するエネルギーを見積もった。そして、この安定化ジルコニアに不純物を添加し、その不純物原子種や濃度を変化させた際のテラヘルツ伝導度とその温度依存性を系統的に調べ、ホッピングに関わるエネルギーの違いを結晶構造の相違に基づいて説明した。さらに、この手法をガドリニウムを添加したセリアにも適用し、ジルコニアとセリアの違いを議論した。こうした研究を通じて、テラヘルツ分光は、従来の低周波域における伝導測定では得られない、固体電解質におけるミクロなイオン伝導を評価するのに有効であることを明確にした。</p>	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (森本智英)			
	(職)	氏	名
論文審査担当者	主 査	教 授	芦田昌明
	副 査	教 授	宮坂 博
	副 査	教 授	寿田 博一
	副 査	准教授	永井正也

論文審査の結果の要旨

近年、次世代のエネルギー技術として燃料電池の開発が盛んに行われ、安定で高い伝導度を持つ固体電解質に関する研究が行われてきた。固体電解質では酸素欠陥やプロトンなどのイオンが電荷担体として固体中のサイト間をホッピングすることで伝搬する。このイオン伝導の評価は一般にメガヘルツ以下のインピーダンス測定によって行われ、数サイト間をまたぐマクロな伝導が評価されてきた。しかし、イオン伝導のさらなる解明や、より高性能な固体電解質の開発には、物質固有のミクロな伝導を評価することが必要不可欠である。

こうした中、申請者はテラヘルツ帯の伝導度を測定し、その温度変化からミクロなイオン伝導を評価することを試みた。テラヘルツ分光は非破壊非接触かつ高い時間分解能で半導体などの電子伝導を測定できる方法として確立している。イオン伝導体においては、電荷担体が数テラヘルツ～10テラヘルツの振動数で振動しながら局在している。この局在を引き起こすポテンシャルは非調和性が強く、温度上昇に伴って大振幅運動が誘起されたイオンは隣接サイトへホッピングする。申請者は、このホッピング過程の温度変化から、ミクロな伝導を評価できると考えた。これを立証するために、もっとも典型的な酸素イオン伝導体で固体酸化物燃料電池の電解質として既に応用されている安定化ジルコニアの測定を行った。そして、ドーパント原子依存性などの系統的な伝導特性から、本手法がミクロな伝導を評価する手法として有効であることを示した。さらに、本手法が様々な材料において適用可能か検証するために、安定化ジルコニアにおけるドーパ量依存性や別の酸素イオン伝導体の測定も行った。以上のことから、申請者はテラヘルツ分光が、固体電解質におけるミクロなイオン伝導を評価する手法であることを世界で初めて示したといえる。

実験手法や解析方法も含めて上記の成果が記載された本論文は、学術上、さらにその応用上も価値が高いものであると判断されるとともに、申請者の優れた研究能力を示すものである。

従って本論文は、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。