

## 論文審査の結果の要旨

報告番号	甲 先 第 365 号	氏 名	LIU XUE
審査委員	主査 杉山 茂 教授 副査 岡村 英一 教授 副査 森賀 俊広 教授		
<b>学位論文題目</b> Structure changes of $Ce_{1-x}Ln_xO_{2-s}$ ( $Ln=La, Gd$ ) and $Ba_{1-x}Zr_{1-y}Y_yO_{3-s}$ solid electrolytes (La及びGdドープ酸化セリウム及びYドープジルコニウム酸バリウムの構造変化)			
<b>審査結果の要旨</b> 固体酸化物燃料電池は、その発電効率が高く環境負荷も小さいことから産業用用途だけでなく家庭用途への拡大が見込まれるため、その電解質材料も性能が高いことはもちろん、資源的に豊富で環境負荷の小さい材料を選択する必要がある。酸化物イオン伝導を示す固体電解質であるLaドープ酸化セリウム (LDC) はLaが他の希土類金属に比べ資源的に余り気味な点からもその用途の拡大が期待されるが、現在利用されているGdドープ酸化セリウム (GDC) と異なり、高いドーパント濃度領域 ( $x>0.3$ in $Ce_{1-x}Ln_xO_{2-s}$ ) においてX線回折法などで解析した構造には低いドーパント濃度領域と比べ変化が見られないものの、伝導率が再び増加するなどその組成に対する物性および構造に複雑な関係性が見られ、実用化に向けて早急な関係性の解明が望まれていた。本論文では、X線吸収微細構造 (XAFS) を解析にすることによりLDCおよびGDC中のLa, GdおよびCeイオン周りの局所構造を解析した。その結果、LDCではLaをドープすることにより導入される酸化物イオン空孔はCeイオンの周りに局在化するのに対し、GDCでは酸化物イオン空孔はGdイオン周り及びCeイオン周りにほぼ統計的に分布することが明らかになった。更に、LDCおよびGDC中に存在するCeイオンと酸化物イオン間の距離はドーパント濃度 (LDCではLa, GDCではGd) の増加とともに徐々にその差が大きくなり、LDCではCeイオン周りに酸化物イオン空孔がより強く局在化することが示された。これらにより、GDCではドーパント濃度が増加すると徐々に伝導率が増加した後ドーパントがオーバードープになると伝導率が減少するが、LDCではドーパント濃度の増加とともにLaイオンとCeイオンの配位数の差が大きくなり酸化物イオン (空孔) が局在化するためある濃度までは伝導度は減少するが、 $x>0.3$ になると局所的に秩序配列した酸化物イオン空孔が酸化物イオンの伝導パスとなり、それが有る有意な距離で確保されるため伝導度が再び向上するのではないかと考えられた。 以上のように、XAFS法を用いてLDCおよびGDCのLa, Gd, Ceイオン周りの局所構造を互いに比較しながらその変化の特徴を見出すところにLIU XUE君の創意工夫が見られ、その結果、これまで不明であったLDCにおける高ドーパント濃度領域における伝導度の再増加の原因を明らかにし、LDCへの実用化へ向けての足がかりをつけることができた。その他Yドープジルコニウム酸バリウムに対してもその焼結性を向上させる技術やその際の構造変化を明らかにしている。従って、本論文は博士 (工学) の学位授与に値するものと判定する。			