# 科学研究費助成事業

\_\_\_\_

研究成果報告書

**т ц ц/ц .** Какепн

平成 2 8 年 5 月 9 日現在

機関番号: 13903 研究種目: 基盤研究(B)(一般) 研究期間: 2012~2015 課題番号: 24360273 研究課題名(和文)陽イオン伝導性結晶配向セラミックスの材料設計と開発

研究課題名(英文)Materials design and development of cation conductive crystal-oriented ceramics

研究代表者

福田 功一郎(FUKUDA, KOICHIRO)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号:90189944

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文):反応拡散法を、Na20-Ga203-Ti02三成分系のNax+3yTi1-xGa4+x-y08(NTG0)多結晶体の配向 化に拡張して適用することに成功した。具体的には、2種類の出発物質NaGa02とGa2Ti05を準備し、この圧粉体をGa2Ti 05/NaGa02/Ga2Ti05の順番に重ね合わせてサンドイッチ型拡散対を作製した。この拡散対を加熱することで得られたNTG 0多結晶体はb軸方向に高配向しており、比較的高いNa+イオン伝導度が実現できた。当該配向手法は拡散対の端成分の タイラインと生成物のタイラインが交差する特徴があり、他の三成分系化合物の一軸配向化にも広範囲に適用可能であ る。

研究成果の概要(英文): The b-axis-oriented polycrystalline Na0.85Ti0.51Ga4.3708 (NTGO) was prepared using the reactive diffusion technique. When the sandwich-type Ga2Ti05/NaGa02/Ga2Ti05 diffusion couple was heated at 1323 K for 24 h, the NTGO polycrystal was readily formed in the presence of a liquid phase. We mechanically extracted the thin-plate electrolyte consisting of the grain-aligned NTGO polycrystal. The ionic conductivity of the electrolyte along the common b-axis direction steadily increased from  $1.3 \times 10-4$  to  $7.3 \times 10-3$  S/cm as the temperature increased from 573 to 1073 K. The NTGO showed the crystal structure (space group C2/m) with substantial positional disordering of one of the two Ga sites. The Na ions occupied ca. 43% of the Wyckoff position 4i site, the deficiency of which would contribute to the relatively high ionic conductivity along the b-axis. The reactive diffusion would be widely applicable as the novel technique to the preparation of grain-aligned ceramics of multi-component systems.

研究分野:工学

キーワード: セラミックス 構造・機能材料 環境材料

#### 1.研究開始当初の背景

### (1) セラミックスの一軸配向化

セラミックスは結晶粒子の高配向化によってその機能が著しく向上する場合がある。 多結晶体としてのセラミックス焼結体の機能を最大限に発揮させるためには、焼結体を 構成する個々の結晶粒子の結晶学的な方位 を揃えた「結晶配向セラミックス」の作製が 有効である。現状では製造過程でテンプレート や粒子の利用やスラリーを磁場中に静置す るなど、複雑なプロセスや特殊な装置を必要 とする。

研究代表者はLa,SiO,とLa,Si,O,から成る拡 散対を空気中で加熱する簡便な方法(反応拡 散法)で、ケイ酸ランタン(LSO)の c 軸方 向が接合界面に垂直に揃った結晶配向セラ ミックスの作製に初めて成功した[1-5]。化 学式が Lag\_33Si 6026 で表される LSO は、アパタ イト型の結晶構造(六方晶系)を有し、酸化 物イオンが c軸に沿って容易に移動すること で、低酸素分圧下や中低温度領域(600 以 下)において比較的高い酸化物イオン伝導性 が発現する[6-8]。さらに化学的に安定で電 子伝導性が殆どないことから、ガスセンサー や SOFC (固体酸化物型燃料電池) 電解質への 応用が期待されている。しかし LSO のイオン 伝導経路は c軸方向に一次元的に限定されて いるため、結晶方位がランダムな多結晶体で は、その潜在的な能力を十分に発揮すること はできなかった。高配向化した LSO 多結晶体 のイオン伝導度は、結晶方位がランンダムな 焼結体と比較して約50倍向上した。

# (2) Na<sup>+</sup>イオン伝導体としてのチタノガリウ ム酸ナトリウム

ー般式が Na<sub>x+3y</sub>Ti<sub>1-x</sub>Ga<sub>4+x-y</sub>O<sub>8</sub> で表わされるチ タノガリウム酸ナトリウム結晶 (NTGO) は、 結晶構造中のトンネル内を Na<sup>+</sup>イオンが高速 伝導することから、固体電解質としての応用 が期待されている [9-17]。化学組成が Na<sub>0.7</sub>Ti<sub>0.3</sub>Ga<sub>4.7</sub>O<sub>8</sub> (x = 0.7, y = 0)の NTGO 単 結晶では、トンネルに平行な b 軸方向の Na<sup>+</sup> イオン伝導度( Na) は 300 で 1×10<sup>-2</sup> S/cm であり、b 軸に垂直な方向に比べ約 2000 倍高 いことが報告されている [9]。一方、ランダ ム配向の NTGO 多結晶体では、300 の Na 値 に比べ 10<sup>5</sup>程度低い[16]。したがって、b 軸方 向に配向した NTGO 多結晶体は、より高い Na<sup>+</sup> イオン伝導度の発現が期待される。

#### 2.研究の目的

### (1)二成分系反応拡散による一軸配向多結晶 体の作製

La<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>(A) と La<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(B) からなる拡散対 A/B を加熱して、c軸配向 LSO(A<sub>3.33</sub>B<sub>1.33</sub>)多結 晶体を作製する場合、反応生成物 A/A<sub>3.33</sub>B<sub>1.33</sub>/B は La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> 二成分系に存在し ており、生成反応式は10 A + 4B 3A<sub>3.33</sub>B<sub>1.33</sub> で表わされる。すなわち、従来の反応拡散法 は二成分系に限定されており、配向化させる 目的化合物( $A_{3.33}B_{1.33}$ )の化学組成は、相図上で 拡散対(A/B)を形成する化合物 A と B の間に 存在することが必要不可欠であった。そのた め反応拡散法では、多成分系の結晶配向セラ ミックスを作製することは不可能であると 考えられていた。

#### (2)反応拡散法の三成分系への拡張

従来は La<sub>2</sub>0<sub>3</sub>-Si0<sub>2</sub> 二成分系の LSO 多結晶体 の配向化に用いられていた反応拡散法を、 Na<sub>2</sub>0-Ga<sub>2</sub>0<sub>3</sub>-Ti0<sub>2</sub> 三成分系の NTGO 多結晶体の 配向化に拡張して適用することを本研究の 目的とする。1050 における Na<sub>2</sub>0-Ga<sub>2</sub>0<sub>3</sub>-Ti0<sub>2</sub> 三成分系の平衡状態図から、NTGO の作製が可 能な二成分系の単相から構成される拡散対 は存在しないことを確認した。そのため、 「NTGO と Ti0<sub>2</sub>成分に富む液相のタイライン」 が「NaGaO<sub>2</sub> と Ga<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>のタイライン」と交差す ることに着目し、液相を介する三成分系の反 応拡散法を着想した。本研究では、タイライ ンが交差する当該手法(タイライン交差法) を用いて NTGO 多結晶体の一軸配向化に成功 し、高い Na 値を実現した。

# 3.研究の方法

# (1) 試料の合成

出発原料に Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>の試薬を用 い、2種類の出発物質 NaGaO<sub>2</sub>と Ga<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>を準 備した。NaGaO<sub>2</sub>(0.250 g)と Ga<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>(0.200 g) の粉体をペレット状 ( $\phi$ 13 mm)に一軸加圧成 型し、Ga<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>/NaGaO<sub>2</sub>/Ga<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>の順番に重ね合 わせてサンドイッチ型拡散対を作製した。こ れを 1050°C で 24 h 焼成し、室温まで徐冷し てペレット状の試料を得た。加熱した拡散対 試料の一部はダイヤモンドカッターで接合 界面に垂直に切断し、鏡面研磨した後にスラ イドガラスに張り付けて薄片を作製した。さ らにイオンミリング法で TEM 用の試料を作製 した。

### (2) 試料の評価

偏光顕微鏡と SEM を用いて微細組織を観察 した。透過型電子顕微鏡 (TEM) で NTGO 結晶 と間隙相について組織観察を行い、TEM に付 属のエネルギー分散型 X 線分析装置(EDX) で組成分析を行った。NTGO の結晶構造は単結 晶 X 線回折法で解析した。Charge flipping 法 [18] を用いて初期構造を導出し、 JANA2006[19]で分率座標を精密化した。差フ ーリエ合成図の残差電子密度が 1×10<sup>3</sup> nm<sup>-3</sup> 以下になった時点で精密化を終了した。配向 試料の X 線粉末回折パターンから Le Bail 法 [20]を用いて積分強度を抽出し、配向度を定 量的に表すロットゲーリングファクターの 値(f<sub>040</sub>)を求めた。交流インピーダンス法(測 定周波数4Hz-5MHz)を用いて、白金電極を 施した配向多結晶体電解質のイオン伝導度 Scm<sup>-1</sup>)を求めた。測定温度は 300°C か ( ら800℃まで50℃間隔である。

### 4.研究成果

# (1)顕微鏡法による組織観察

偏光顕微鏡観察から、NaGaO2が存在した領 域(厚み590μm)にNTGOの針状結晶が生成 していた。クロスニコル下で45°回転させ ると、結晶粒子が一斉に直消光を示すことか ら、多結晶体が配向していることが示された。 反射電子組成像から、NaGaO2が存在した領域 は針状結晶が元のGa2TiO5/NaGaO2の接合界面 に垂直に成長している様子が確認できた。一 方、Ga2TiO5が存在した領域のNTGO結晶は15 μm以下の粒状であった。

#### (2)結晶構造解析

観測された回折強度分布から最も可能性 の高い空間群は C2/m であった。導出した初 期構造の Na 席は Wyckoff 位置 4*i* を占有し、 2 種類の Ga 席は 4*i* (Ga1)と 4*i* (Ga2)、 Ti 席は 2*a* (Ti)、 4 種類の 0 席は 4*i* (01)と 4*i* (02)、 4*i* (03)、 4*i* (04)を占有した。この構 造を精密化したところ、Ti 席に Ga が置換固 溶していること、さらに Ga2 席の近傍に分割 原子位置を設ける必要があることが分かっ た。信頼度因子の値は R = 0.0205、wR = 0.0282となり、化学組成式は Na<sub>0.85</sub>Ga<sub>4.37</sub>Ti<sub>0.51</sub>O<sub>8</sub> (x =0.511、y = 0.120)と決定された。構造の妥 当性は原子間距離と Charge distribution か ら確認した。図 1 に精密化した結晶構造モデ ルを示す。



図1 NTGO の結晶構造図

### (3) TEM による微細組織観察と間隙相の同定

NTGO 結晶からの制限視野電子回折 (SAED) パターンには、基本反射の他に整数倍の超格 子反射が観測された。変調波数ベクトル k と 指数 n を用いると全ての回折点は Q = ha\* + kb\* + /c\* + nk\*で表わされ、k=1/4b\* + 1/2c\* であった。今回の X 線回折法で求めた結晶構 造は平均構造に相当する。

SAED パターンと EDX スペクトルから、間隙 相は Ga が固溶した Na<sub>2</sub>Ti<sub>4</sub>O<sub>9</sub>(G-NTO)であり、 組成式は Na<sub>2</sub>Ti<sub>3.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>O<sub>8.7</sub> であった(空間群 C2/m, a = 2.3108 nm、b = 0.29392 nm、c = 1.0653 nm、= 102.54°)。この化学組成 は Na<sub>2</sub>O-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub>三成分系において、1050 で液相領域内に位置することから、拡散対の 加熱温度では液相であったことが示された。

#### (4)結晶配向度の評価

NTGO の構造モデルから、ランダム配向試料 の X 線粉末回折パターン(回折線の位置と積 分強度)を計算から求めた。この回折パター ンと配向試料の回折パターンと比較すると、 後者の回折線では 0k0 反射が著しく増大して いた。ロットゲーリング法で求めた配向度は  $f_{0k0} = 0.71$ であり、作製した電解質が b軸に 高配向した NTGO 多結晶体であることが確認 できた。

### (5) 交流インピーダンス法による Na<sup>+</sup>イオン 伝導度の評価

白金電極を施した配向多結晶体電解質を 300 から 50 間隔で 800 まで加熱し、各 温度で Na<sup>+</sup>イオン伝導度を求めた。等価回路 を仮定し、ナイキストプロットに対してフィ ッティングして粒内抵抗と *CPE* を求めた。 *CPE* から見積もったキャパシタンスの値は粒 内では 10<sup>-11</sup> F/cm、粒界では 10<sup>-8</sup> F/cm 程度で あり、標準的なセラミックスの数値とよく一 致していた[21]。配向方向に沿ったイオン伝 導度の値は、300 から 800 への昇温過程で 1.3×10<sup>-4</sup> S/cm から 7.3×10<sup>-3</sup> S/cm まで増加 した。このイオン伝導度の値は、全ての温度 域においてランダム配向多結晶体 (Na<sub>0.7</sub>Ga<sub>4.7</sub>Ti<sub>0.3</sub>O<sub>8</sub>)と比較して 100 倍以上高 い(図2)。





伝導度のアレニウスプロットから、519 付近にスロープ変化がみられた。高温側の活 性化エネルギーの値( $E_a$ )は 0.39 eV で、低温 側の  $E_a$ 値は 0.57 eV であった。これらの値は 単結晶の b 軸方向に平行な伝導度から求めら れた値 (0.25 eV [9])と比較すると約 1.5 倍 大きい。活性化エネルギーの違いは、Na 席の 占 有 率 が 強 く 影響する と考えられる。 Na<sub>0.85</sub>Ti<sub>0.51</sub>Ga<sub>4.37</sub>0<sub>8</sub> と Na<sub>0.7</sub>Ti<sub>0.3</sub>Ga<sub>4.7</sub>0<sub>8</sub> の Na 席の 占有率は、それぞれ 0.425 と 0.35 である。 すなわち、一次元陽イオン伝導体において、 トンネル内を伝導する陽イオンは、その占有 率が高いほど、より高い原子間ポテンシャル が発生するとされており[22]、これによって 活性化エネルギーの値が大きくなったと考 えられる。

SEM 観察から電解質の空隙率は約 75.9%で あった。緻密な b 軸高配向の NTGO 多結晶体 が作製できれば、約 1.32 倍の伝導度 (1.7× 10<sup>-4</sup> S/cm 程度)が期待できる。

#### (6)Ga,TiO,/NaGaO, 間の反応拡散機構

今回、 $Ga_2TiO_5 \ge NaGaO_2$ から成る拡散対を 1050°C で加熱すると、NTGO と G-NTO から構成 される多結晶体が生成した。 $Na_2O-Ga_2O_3-TiO_2$ 三成分系の平衡状態図から「NTGO と G-NTO の タイライン」が「 $Ga_2TiO_5 \ge NaGaO_2$ のタイライ ン」と交差する点 ( $P_i$ )は 16.0mol%  $Na_2O$ 、 34.0mol% TiO\_2、50.0mol%  $Ga_2O_3$ であった。今 回作製した拡散対の平均化学組成は  $P_i$  に極 めて近い。そのため拡散対を加熱して反応が 進行すると、NTGO と G - NTO の二相に変化す ると考えられる。この化学反応式は反応物の [NaGaO\_2] と[ $Ga_2TiO_5$ ]、および生成物の[NTGO] と[G-NTO]を用いて次式で表わされる。

 $A[NaGaO_2] + B[Ga_2TiO_5]$  C[NTGO] + D[G-NTO]

ここで $A \ge B$  *C* Dは係数であり、 $P_i$ の化学 組成から $[A: B] \ge [C: D]$ の比を決定すること ができる。それらはそれぞれ[0.485: 0.515]と[0.766: 0.234]であった。

拡散対の反応初期段階では、Ga<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>/NaGaO<sub>2</sub> 接合界面で NTGO の微結晶と G-NTO 組成の液 相が生成し、時間の経過にしたがって、NTGO の針状結晶が NaGaO<sub>2</sub> 領域の中心部に向かっ て針状に成長すると考えられる。反応終了後 の冷却過程では、NTGO 結晶の間隙に生成した 液相が G-NTO として結晶化する。最終的には、 高配向した NTGO 多結晶体と G-NTO の微結晶 から成る多結晶体が得られる。

### (7)イオン交換法を用いた陽イオン伝導種の 操作

反応拡散で作製した多結晶体とイオン交換を行なった多結晶体について、微細組織を 光学顕微鏡と走査型電子顕微鏡で観察し、さらに配向度をX線回折装置を用いて調べた。 拡散方向に沿って針状結晶が生成しており、 高い配向度の多結晶体が生成していること を確認した。ロットゲーリングファクターの 値は常に0.67以上の値が得られたことから、 良好な配向度であった。配向多結晶体から単 結晶を取り出し、単結晶X線回折法を用いて 結晶構造を決定した。その結果、イオン交換 反応の前後において、結晶構造のフレームワ ークはほぼ維持されながら、トンネル内の陽 イオンが置換されることが示された。

(8)Al<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>/NaAlO<sub>2</sub> 間の反応拡散と配向多結

### 晶体の作製

Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>と TiO<sub>2</sub>、AI<sub>2</sub>O<sub>3</sub>試薬から AI<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>粉末 試料と NaAIO<sub>2</sub> 粉末試料を合成し、 AI<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub>/NaAIO<sub>2</sub>から成る拡散対を準備した。 これを所定温度で長時間加熱することで、 Na<sub>1-y</sub>Ti<sub>2+y</sub>AI<sub>5-y</sub>O<sub>12</sub>固溶体から成る多結晶体を作 製した。アニールした拡散対は拡散方向に垂 直または平行にダイアモンドカッターで切 り出した。試料表面を鏡面研磨して微細組織 を走査型電子顕微鏡で観察し、さらにX線回 折装置を用いて多結晶体の配向度を調べた。 その結果、拡散方向に沿って針状結晶が生成 しており、高い配向度の多結晶体が作製でき たことを確認した。ロットゲーリングファク ターの値は  $f_{040}$  = 0.68 であった。

配向多結晶体から単結晶を取り出し、単結 晶 X 線回折法を用いて結晶構造を決定した。 その結果、化学式は Na<sub>0.78</sub>Ti<sub>2.22</sub>AI<sub>4.78</sub>O<sub>12</sub>(*y* = 0.22)と求められた。比較的高い Na+イオン 伝導性の発現は、Na 席が一部欠損することか ら矛盾無く説明できた。

### <引用文献>

[1] Fukuda, K.; Asaka, T.; Hamaguchi, R.;
Suzuki, T.; Oka, H.; Berghout, A.; Béchade,
E.; Masson, O.; Julien, I.; Champion, E.;
Thomas, P. Chem. Mater. 2011, 23, 5474.
[2] Fukuda, K.; Asaka, T.; Ishizawa, N.;
Mino, H.; Urushihara, D.; Berghout, A.;
Béchade, E.; Masson, O.; Julien, I.;
Thomas, P. Chem. Mater. 2012, 24, 2611.
[3] Fukuda, K.; Asaka, T.; Oyabu, M.;
Urushihara, D.; Berghout, A.; Béchade, E.;
Masson, O.; Julien, I.; Thomas, P. Chem.
Mater. 2012, 24, 4623.
[4] Eukuda, K.; Asaka, T.; Okina, M.;

[4] Fukuda, K.; Asaka, T.; Okino, M.; Berghout, A.; Béchade, E.; Masson, O.; Julien, I.; Thomas, P. Solid State Ionics 2012, 217, 40.

[5] Fukuda, K.; Asaka, T.; Hara, S.; Oyabu, M.; Berghout, A.; Béchade, E.; Masson, O.; Julien, I.; Thomas, P. Chem. Mater. 2013, 25, 2154.

[6] Nakayama, S.; Kageyama, T.; Aono, H.;
Sadaoka, Y. J. Mater. Chem. 1995, 5, 1801.
[7] Nakayama, S.; Sakamoto, M. J. Eur.
Ceram. Soc. 1998, 18, 1413.

[8] Béchade, E.; Masson, O.; Iwata, T.;
Julien, I.; Fukuda, K.; Thomas, P.;
Champion, E. Chem. Mater. 2009, 21, 2508.
[9] Chandrashekar, G. V.; Bednowitz, A.;
La Placa, S. J. Fast Ion Transport in Solids 1979, 447.

[10] Michiue, Y.; Watanabe, M.; Fujiki, Y. Mater. Res. Bull. 1991, 26, 597.

[11] Michiue, Y.; Sasaki, T.; Watanabe, M.; Fujiki, Y. Mater. Res. Bull. 1993, 28, 173.

[12] Michiue, Y.; Watanabe, M. Solid State

Ionics 1994, 70-71, 186. [13] Michiue, Y.; Takenouchi, S.; Sasaki, T.; Watanabe, M.; Izumi, F.; Morii, Y.; Shimojo, Y. Solid State Ionics 1998. 113-115, 471. [14] Michiue, Y.; Sato, A. Acta Crystallogr. 2004, B60, 692. [15] Empie, N.; Edwards, D. Solid State Ionics 2006, 177, 77. [16] Edwards, D. D.: Empie. N. H.: Meethong. N.; Amoroso, J. W. Solid State Ionics 2006, 177, 1897. [17] Amoroso, J. W.; Edwards, D. D. Solid State Ionics 2008, 179, 878. [18] Oszlányi, G.; Süto, A.; Acta Crystallogr. 2004, A60, 134. [19] Petricek, V: Dusek, M.: Palatinus, L. JANA2006: The Crystallographic Computing System; Institute of Physics: Praha, Czech Republic, 2006. [20] Le Bail, A.; Duroy, H.; Fourquet, J. L. Mater. Res. Bull. 1988, 23, 447. [21] J. T. S. Irvine, D. C. Sinclair and R. West, Electrocermics: Α. Characterization by Impedance Spectroscopy ", Adv. Matter. 1990 2(3). A32, 132-138. [22] Beyeler, H. U.; Pietronero, L.; Strässler, S.; Wiesmann, H. J. Phys. Rev. Lett. 1977, 38, 1532. 5.主な発表論文等 〔雑誌論文〕(計5件) R. Hasegawa, M. Okabe, T. Asaka, N. Ishizawa and K. Fukuda, "Structure and Ionic Conductivity of Well-Aligned Polycrystalline Sodium Titanogallate Grown by Reactive Diffusion, " J. Solid State Chem., 查読有, 229, 2015, pp.252-259. DOI: 10.1016/j.jssc.2015.06.005 D. Kurokawa, S. Takeda, M. Colas, <u>T.</u> Asaka, P. Thomas, and K. Fukuda, "Phase Transformation of  $Ca_4[AI_6O_{12}]SO_4$  and Its Disordered Crystal Structure at 1073 K, " J. Solid State Chem., 查読有, 215, 2014, pp.265-270. DOI: 10.1016/j.jssc.2014.03.040 T. Asaka, R. Kotani, T. Kudo, H. Yoshida, and K. Fukuda, "Synthesis and Disordered Crystal Structure of  $AI_3O_{3.5}C_{0.5}$ , " Inor. *Chem.*, 查読有, **52**, 2013, pp.2648-2653. DOI: 10.1021/ic302674a T. Uchida, S. Suehiro, T. Asaka, H. Nakano, and <u>K. Fukuda</u>, "Syntheses and Crystal Structures of Li(Ta<sub>0.89</sub>Ti<sub>0.11</sub>)O<sub>2.945</sub> and (Li<sub>0.977</sub>Eu<sub>0.023</sub>) (Ta<sub>0.89</sub>Ti<sub>0.11</sub>)O<sub>2.968</sub>, "Powder *Diffr*., 查読有, **28**(03), 2013, pp.178-183.

DOI: 10.1017/S0885715613000018

K. Fukuda, M. Okabe, and T. Asaka,
"Microtexture of *c*-Axis-Oriented Polycrystalline Lanthanum Silicate Oxyapatite Formed by Reactive Diffusion, "*J. Am. Ceram. Soc.*, 查読有, **99**, 2016, in press. DOI: 10.1111/jace.14283
[学会発表](計12件)

北川 拓也、加藤 諒也、原 晋次、<u>浅香 透、 福田 功一郎</u>、 気相-固相反応拡散による一 軸配向多結晶体の新規作製方法、日本セラ ミックス協会 2016 年年会、2016 年 3 月 14 日~16 日、早稲田大学(東京都・新宿区)。 福田 功一郎、長谷川 諒、北川 拓也、中 森 宏司、<u>浅香 透</u>、気相-固相反応拡散によ る結晶配向セラミックスの新規作製方法、 第54回セラミックス基礎科学討論会、 2016年1月7日~8日、アバンセ(佐賀研・ 佐賀市)。

市川 聡、<u>浅香 透、福田 功一郎</u>、高温X 線粉末回折法と高温ラマン分光法を用いた イーリマイト型化合物の不規則構造解析、 日本セラミックス協会東海支部学術研究発 表会、2015年12月12日、名古屋大学(愛 知県・名古屋市)。

長谷川 諒、岡部 桃子、<u>浅香 透</u>、石澤 伸 夫、<u>福田 功一郎</u>、反応拡散によるチタノガ リウム酸ナトリウム多結晶体の一軸配向化 とイオン伝導、平成 27 年度日本結晶学会年 会、2015 年 10 月 17 日~18 日、大阪府立大 学(大阪府・堺市)。

<u>福田 功一郎</u>、新規イオン伝導体の探索と 組織化による高機能発現、第7回新機能無 機物質探索研究センターシンポジウム(招 待講演) 2015年8月21日、東北大学(宮 城県・仙台市)。

長谷川 諒、岡部 桃子、<u>浅香 透</u>、石澤 伸 夫、<u>福田 功一郎</u>、反応拡散による一軸配向 チタノガリウム酸ナトリウム多結晶体の作 製と結晶構造解析、N a<sup>+</sup>イオン伝導、日本 セラミックス協会 2015 年年会、2015 年 3 月 18 日~20 日、岡山大学(岡山県・岡山 市)。

<u>福田 功一郎</u>、長谷川 諒、岡部 桃子、<u>浅</u> <u>香</u>透、石澤 伸夫、一軸配向チタノガリウ ム酸ナトリウム多結晶体の作製とイオン伝 導、第53回セラミックス基礎科学討論会、 2015年1月8日~9日、京都テルサ(京都 府・京都市)

長谷川 諒、岡部 桃子、<u>浅香 透</u>、石澤 伸 夫、<u>福田 功一郎</u>、一軸配向チタノガリウム 酸ナトリウム多結晶体の作製とナトリウム イオン伝導性の評価、日本セラミックス協 会東海支部学術研究発表会、2014 年 12 月 6 日、名古屋工業大学(愛知県・名古屋市)。 市岡 裕晃、古谷 彰平、中野 裕美、<u>浅香</u> 透、福田 功一郎、近紫外線励起赤色蛍光体 Li (Ta<sub>1-x</sub>Ti<sub>x</sub>)0<sub>3-x/2</sub>:Eu<sup>3+</sup>(x = 0、0.11、0.25) の電子密度分布と結晶構造、発光特性、日 本セラミックス協会 2014 年年会、2014 年3 月 17 日~19 日、慶応義塾大学(神奈川県・ 横浜市)。

内田 智裕、末廣 志穂、中野 裕美、<u>浅香 透</u>、 <u>福田 功一郎</u>、近紫外線励起赤色蛍光体 Li (Ta<sub>0.89</sub>Ti<sub>0.11</sub>)0<sub>2.945</sub>:Eu<sup>3+</sup>の電子密度分布と 結晶構造、日本セラミックス協会 2013 年年 会、2013 年 3 月 17 日~19 日、東京工業大 学(東京都・目黒区)。

内田 智裕、中野 裕美、<u>浅香</u>透、<u>福田 功</u> <u>一郎</u>、反応拡散による結晶配向セラミック スの新規作製方法 – Li-Nb-Ti-0系多結晶 体への応用 –、日本セラミックス協会 2013 年年会、2013 年 3 月 17 日~19 日、東京工 業大学(東京都・目黒区)。

小谷 亮介、<u>浅香</u>透、<u>吉田 英人、福田 功</u> 一郎、新物質 AI<sub>3</sub>0<sub>3.5</sub>C<sub>0.5</sub>の発見と不規則構造 解析、反位相区域構造が示す相転移機構、 日本セラミックス協会 2013 年年会、2013 年 3 月 17 日~19 日、東京工業大学(東京 都・目黒区)。

〔その他〕

ホームページ等

名古屋工業大学 結晶性萌芽材料研究室(福 田・浅香研究室)

http://crystals.web.nitech.ac.jp

# 6.研究組織

(1)研究代表者
 福田 功一郎(FUKUDA, Koichiro)
 名古屋工業大学・工学研究科・教授
 研究者番号:90189944

(2)研究分担者

浅香 透(ASAKA, Toru)
 名古屋工業大学・工学研究科・准教授
 研究者番号:80525973

(3)連携研究者

吉田 英人 (YOSHIDA, Hideto)
 東京大学・理学研究科・技術職員
 研究者番号:30376553