

氏名・（本籍）	中 村 裕 之（ 福岡 県 ）		
学位の種類	博 士（ 工学 ）		
学位記番号	生工博甲第194号		
学位授与の日付	平成25年 3月25日		
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当		
学位論文題目	個体量子論による金属酸化物系光触媒の電子構造に関する研究		
論文審査委員会	委員長	教授	花 本 剛 士
		〃	白 井 義 人
		〃	石 黒 博
		〃	早 瀬 修 二
		〃	鳥 井 正 史

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、金属酸化物光触媒の固体電子構造を、多体系量子論に基づく第一原理エネルギーバンド計算法により理論的に明らかにすることを目的とした研究論文である。また、この研究により光触媒機能の発現機序の論証を試みている。

具体的な研究手法としては、密度汎関数理論（density functional theory, DFT）に基づく第一原理分子動力学計算法により格子定数と原子座標を最適化した結晶データを作成し、第一原理エネルギーバンド計算の中で最も高精度な Full-potential Linearized Augmented Plane Wave (FLAPW) 法により、セルフコンシステントに固体電子構造計算を実施している。第一原理計算における交換相関相互作用は、一般化密度勾配法 (generalized gradient method, GGA) に基づき行っており、FLAPW 計算では、固体物質中の全電子を計算に取り入れて電子波動関数を求めた後、その波動関数から種々の物理量を導き出している。このような計算手法と、その結果の論証により本論文は第一章から第七章で構成されている。第一章は序論であり、可視光応答型光触媒研究の現状を述べ、第一原理エネルギーバンド計算に関する基礎的な概念について説明した後、本研究の目的を明らかにしている。第二章では、酸化チタンの中で電子構造による解明が不十分なブルックサイトについて、アナターゼやルチルとの電子構造の違いについて考察している。第三章では、アナターゼの可視光応答化を実現するために、アナターゼ中へ種々の不純物元素をドーピングした研究が活発化している現状を踏まえ、S 原子をドーピングしたアナターゼを例とし、不純物ドーピング系に対する第一原理計算を用いた適切なアプローチ方法についてまとめている。第四章では、可視光応答性が実験的に報告された Ta 系複合酸化物 (InTaO_4) に関する電子構造の詳細を述べ、 InTaO_4 における可視光応答性発現の機序についての説明を試みている。更に、アナターゼの可視光応答化に関して最も有効であると考えられている窒素に注目し、窒素をドーピング

た InTaO_4 の電子構造の計算モデルを提示した。第五章及び第六章では、一般の金属酸化物では価電子帯が $\text{O } 2p$ 軌道に強く支配されるため、光生成したホールが局在化し易いという考え方のもと、価電子帯におけるエネルギーバンドの高分散が期待される Bi 系複合酸化物である CaBi_2O_4 及び $\text{Ca}_4\text{Bi}_6\text{O}_{13}$ にそれぞれ注目した電子構造計算を行っている。第七章では、本研究の総括を行ない研究成果と今後の課題も示している

この論文は、金属酸化物光触媒の固体電子構造を理論的に明らかにすることを目的とした研究論文である。とくに、実験的機器分析では解析出来ていない、不純物ドーパ系の理論的計算により構造モデルを示すなど、材料開発における課題に理論を以て取り組み、学術的・技術的な貢献があるものと判じられる。

学位論文審査の結果の要旨

本論文に関し、論文調査委員から、計算を進める場合の条件の設定の仕方やそのバリエーション、不純物ドーパ系で得られた計算に基づくモデルと実験データの補完、などについて質問がなされたが、いずれも著者から満足（明確）な回答が得られた。

公聴会には、多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上により、論文調査及び最終試験の結果に基づき、審査委員会において慎重に審査した結果、本論文が、博士（工学）の学位に十分値するものであると判断した。