

# EDTA 金属錯体を出発原料にしたイットリア安定化ジルコニア膜の合成

## Synthesis of Ytria Stabilized Zirconia Films Using Metal-EDTA Complex

○中村陽平<sup>1</sup>、中村 淳<sup>2,1</sup>、小松 啓志<sup>1</sup>、齋藤 秀俊<sup>1</sup> (1.長岡技科大,2.中部キレスト)

°Nakamura Yohei<sup>1</sup>, Atsushi Nakamura<sup>2,1</sup>, Keiji Komatsu<sup>1</sup>, Hidetoshi Saitoh<sup>1</sup>

(1.Nagaoka Univ. Tech. 2.Chubu Chelest Co., Ltd.)

E-mail: [hts@nagaokaut.ac.jp](mailto:hts@nagaokaut.ac.jp)

**【緒言】** イットリア安定化ジルコニア (YSZ) は高いイオン導電性を持つことから、固体酸化物形燃料電池 (SOFC) の電解質として注目されている。電解質膜はイオン導電性のために組成設計されなければならない、また水素のリークを防ぐために空孔のない緻密膜が求められる。物理気相析出 (PVD) 法では組成設計に難があり、スクリーン印刷法では膜厚が大きくなるためイオン導電性が損なわれる。そこで、蒸気圧が極めて低いエチレンジアミン四酢酸 (EDTA) を出発原料として、塗布法と大気焼成を組み合わせる方法で YSZ 薄膜合成を試みた。

**【実験方法】** Zr と Y をそれぞれキレートした EDTA 金属錯体、すなわち Zr-EDTA と Y-EDTA を金属組成比率で [Zr]:[Y]=92:8 とした水溶液を原料溶液とした。スピコーター (ACT-300D II : アクティブ製) を用いて回転速度を 7000 rpm とし、回転中に原料溶液を Si(100) 単結晶基板 (50×50×1 mm<sup>3</sup>) 上に 0.5 ml 滴下することで、原料溶液を基板上に拡散させて塗布した。溶液を塗布した後、直ちにマッフル炉を用いて大気雰囲気下で 1000°C の温度で 1 時間焼成を行い、焼成後室温まで自然冷却した。この工程を 5, 10, 15 回繰り返すことで試料を作製した。各試料の結晶構造を X 線回折 (XRD) 法、膜の断面形態を走査型電子顕微鏡 (SEM) 法、膜厚及び空孔率を分光エリプソメトリ (SE) 法で調査した。膜の組成分析は高周波誘導結合プラズマ発光分光分析法 (ICP) を用いて実施する。

**【結果と考察】** Figure 1 に XRD 法により得られたプロファイルを示す。プロファイルから ZrO<sub>2</sub> 正方晶の (001) 面、ZrO<sub>2</sub> 単斜晶 (122) 面に帰属できるピークが確認された。塗布・焼成工程回数の増加に伴い正方晶のピークの半値幅が 0.34 から 0.23 に変化しピーク先鋭化が確認された。Figure 2 に塗布・焼成工程回数を変えて作製した YSZ 膜の断面 SEM 像を示す。断面 SEM 像と SE 法から空孔率 0.03% の緻密膜が確認でき、塗布・焼成工程回数に伴い、膜厚が 78nm から 224nm へ直線的に増加することが確認できた。膜の組成分析結果は当日詳細に報告する。

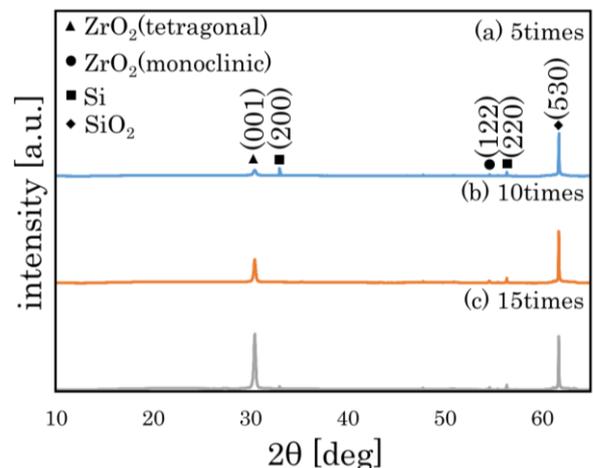


Fig.1. XRD profiles of films,

(a) 5 times, (b) 10 times, and (c) 15 times.

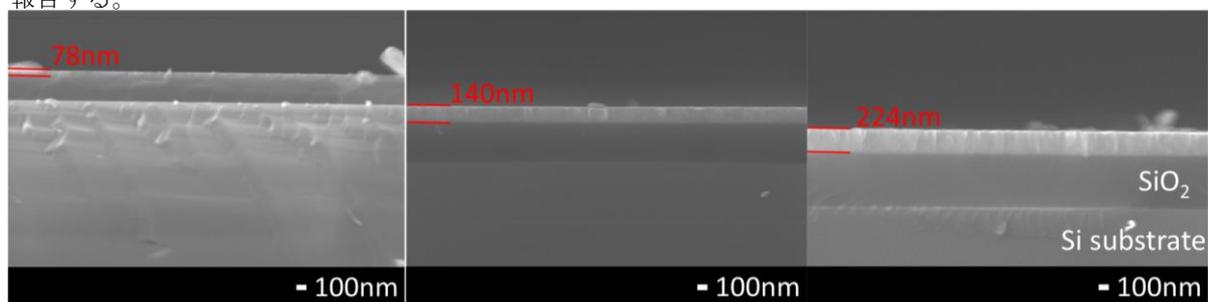


Fig.2. Cross-sectional SEM image of films, (a) 5 times, (b) 10 times, and (c) 15 times.

参考文献

1) Neelima Mahato et al., *Progress in Materials Science*. **72** (2015) 141-337