

キレートフレイム法により合成した Gd 添加 CeO₂ 膜の封孔処理 Sealing treatment of Gd-doped CeO₂ synthesized by chelate flame method

長岡技科大¹, 中部キレスト²

○中村 祥太¹, 中村 淳^{2,1}, 小松 啓志¹, 齋藤 秀俊¹,

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

○S. Nakamura¹, A. Nakamura^{2,1}, K. Komatsu¹, H. Saitoh¹

E-mail: hts@nagaokaut.ac.jp

【緒言】我々は、キレートフレイム法を用いて、Ce-EDTA と Gd-EDTA の混合粉体を出発原料とし、SUS430 基材上に Gd 添加 CeO₂ (GDC)粒子が得られることを報告した¹⁾。作製した GDC 粒子を積層させることで、ミクロンオーダーの気孔を有する GDC 膜の合成が可能である。一方、(Ce,Gd)-EDTA 金属錯体の水溶液を用いて、塗布法と大気焼成を組み合わせる方法で膜厚数百 nm の GDC 薄膜の合成を報告している²⁾。よって、キレートフレイム法で作製した GDC 膜の気孔中に(Ce,Gd)-EDTA 金属錯体の水溶液を浸透させ、大気焼成を行うことで封孔処理ができるのではないかと考えた。(Ce,Gd)-EDTA 金属錯体の水溶液を用いて、キレートフレイム法で作製された GDC 膜の封孔処理を試みた。

【実験方法】粉体供給装置(TPP-5000: 九溶技研株式会社)に金属組成比率が[Ce]:[Gd]=8:2 の Ce-EDTA と Gd-EDTA の混合粉体(中部キレスト製)を投入し、キャリアガスとして窒素を用いて、スプレーガン(6P-II: Sulzer Metco)へ搬送した。搬送した混合粉体を酸素-水素炎中に導入し、SUS430 基板(20 × 50 × 3 mm³)上に GDC 粒子を堆積させ、これを Sample1 とした。この時のスプレーガンと基板の距離を 120 mm とし、原料の供給量を 3 g/min とした。次に、(Ce_{0.8}Gd_{0.2})-EDTA 金属錯体の濃度が 15 wt.% である水溶液(中部キレスト製)を Sample1 の全体を覆うように塗布した。その後、マッフル炉を用いて 850°C で 1 時間焼成後自然冷却を行い、これを Sample2 とした。作製した試料の結晶構造は X 線回折(XRD)法を用いて評価した。また、表面及び断面の形態観察を走査型電子顕微鏡(SEM)法、表面及び断面方向の元素分布を SEM に搭載されたエネルギー分散型 X 線分析(EDX)装置を用いて調査した。

【結果と考察】XRD 法より、作製した試料の堆積物は (Ce_{0.7}Gd_{0.3})O_{1.85} (ICDD card 00-046-0507)を含有していることが分かった。表面及び断面の EDX 2 次元元素マッピング像より、基材上に Ce と Gd の各元素が同じ堆積物から確認された。Figure 1 に Sample1,2 の断面 SEM 像を示す。球状粒子と扁平粒子が確認された。更に Sample2 では膜中の気孔に塗布法と大気焼成由来の堆積物が確認された。Sample1 の GDC 膜厚(SD)は 6.8 μm(0.6)、2 次元気孔率(SD)は 15.5 % (5.8)であった。一方 Sample2 の GDC 膜厚(SD)は 7.5 μm(1.2)、2 次元気孔率(SD)は 12.0 % (4.6)であった。算出された Sample1,2 の GDC 膜厚と 2 次元気孔率に有意な差がなかったが、Sample2 では膜中の気孔に塗布法と大気焼成由来の堆積物が確認されたことから、キレートフレイム法後に(Ce_{0.8}Gd_{0.2})-EDTA 金属錯体の水溶液を用いた塗布法と大気焼成を行うことで封孔処理できると考えられる。

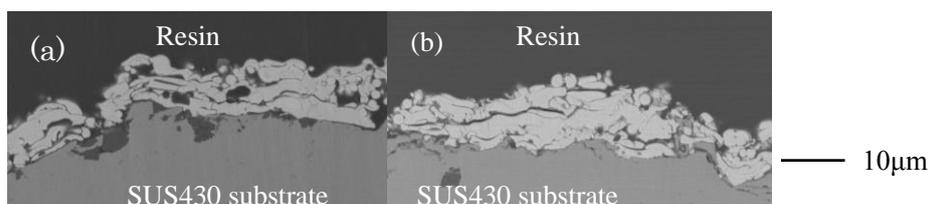


Fig.1 Cross-sectional microstructures of GDC films deposited on SUS 430 substrate with different methods,

(a) chelate flame method (Sample1) and (b) coating method and atmospheric firing after chelate

1) 第 77 回応用物理学会学術講演会 14a-A37-10 (2016). 2) 第 77 回応用物理学会学術講演会 13p-D62-12(2016).