

キレート焼成法に キレートフレイム法を組み合わせた Gd 添加 CeO₂ 膜の合成 Synthesis of Gd-doped CeO₂ film combining chelate flame method with chelate firing 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】金属とセラミックスの接合は、材料特性が著しく異なるため両部材間の結合の形成や熱応力の緩和を行うことが重要である¹⁾。そのため、金属表面をセラミックス化、またはセラミックス表面を金属化することによって、部材間の結合の形成や熱応力の緩和を行い金属とセラミックスを接合する。その中でも、金属表面をセラミックス化する手法では、金属表面を酸化させて中間層とし、中間層とセラミックスの結合を形成することによって接合することができる²⁾。我々は、キレートフレイム法を用いて Gd 添加 CeO₂(GDC)膜の合成に成功している。また、(Ce_{0.8}Gd_{0.2})-EDTA 金属錯体の水溶液を用いて、塗布法と大気焼成により膜厚数百 nm の GDC 膜の合成を報告している³⁾。そこで、上記 2 つの手法を組み合わせ、SUS 基材上に GDC 膜を堆積させることで、セラミックス同士の結合が形成され、付着効率が向上するのではないかと考えた。本報告では、SUS 基材上に塗布法と大気焼成にキレートフレイム法を組み合わせ合成した GDC 膜の微細構造を調査した。

【実験方法】キレートフレイム法のみを行った試料を Sample1、塗布法と大気焼成後にキレートフレイム法を行った試料を Sample2 とし、以下の手順で作製した。キレートフレイム法において、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。一方、塗布法と大気焼成においては、(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 SUS430 基板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℃で 1 時間大気焼成後自然冷却を行った。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、基板上に 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 では塗布法と大気焼成由来の、亀裂の入った堆積物の上にキレートフレイム法由来の粒子が堆積していることを確認した。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 8.9 μm(2.0)、2 次元気孔率(SD)は 14.1 %(2.5)であった。

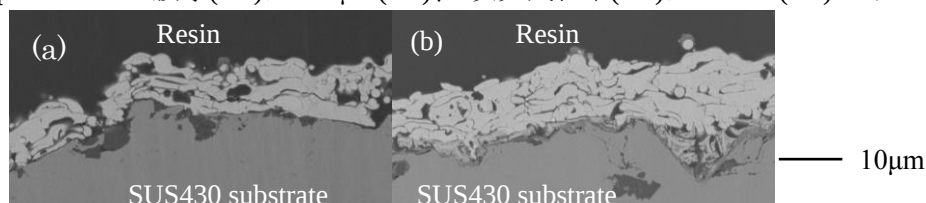


Fig.1 Cross-sectional microstructures of GDC films deposited on SUS 430 substrate with different methods,

(a) chelate flame method (Sample1) and (b) chelate flame method after coating method and atmosphere

1) 岩本信也, 金属とセラミックスの接合,P368, 内田老鶴園(1990).

2) 坂田 君子, セラミックスと金属の接合, 日本複合材料学会誌, 12 ,No.6(1986).

3) 菊田 剛史, 第 77 回応用物理学会学術講演会 13p-D62-12(2016).