

**ペロブスカイト型導電性-絶縁性酸化物
コア-シェルナノ粒子を用いた大容量複合キャパシタの作製**
**Fabrication of High-performance Composite Capacitors Using Perovskite-type
Conductive-Insulating Oxides Core-Shell Nanoparticles**

山梨大学¹ °(M2)服部 優哉¹, 上野 慎太郎¹, 藤井 一郎¹, 和田 智志¹

Univ. of Yamanashi¹, °Yuya Hattori¹, Shintaro Ueno¹, Ichiro Fujii¹, Satoshi Wada¹

E-mail: sueno@yamanashi.ac.jp

【緒論】我々は薄い粒界層において大容量を取得することのできる粒界絶縁型(BL)キャパシタに注目している。BL キャパシタは導電体-絶縁体のコア-シェル構造の集合体と見なすことができ、コアにペロブスカイト型構造の導電性酸化物、シェルに格子定数の近いペロブスカイト型絶縁性酸化物を用いれば、エピタキシャル界面を導入することができると考えられる。また、均一で粒界のない薄い絶縁層を導入できれば、高い有効比誘電率と高い絶縁破壊電場を併せ持つ複合キャパシタを作製することが可能になると考えられる。我々はこれまで SrRuO_3 (SR)を導電性酸化物コアに用いて、湿式法により絶縁性ペロブスカイト層での被覆を試みたが、SR の分解や絶縁性ペロブスカイト化合物の原料との反応による不純物の生成が確認された。そこで我々は SR に代わる導電材料として LaNiO_3 (LN)を検討した。本研究では薄膜の研究例[1,2]を参考に、コアに LN、シェルに $(\text{Bi}_{0.5}, \text{K}_{0.5})\text{TiO}_3$ (BKT)などを選定しコア-シェル粒子の合成を行い、複合キャパシタの作製を試みた。

【実験方法】ここでは LN-BKT の系について述べる。コアとなる LN ナノ粒子 はゾル-ゲル法により合成した。得られた LN ナノ粒子と TiO_2 ナノ粒子(アナターゼ)を秤量しハンドミルで混合した。次に、 $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ を秤量し、純水を加え超音波処理を行った。一方で KOH 水溶液を 14.4M になるように調製し、この溶液中に先ほどの LN、 TiO_2 の混合粉を加え、160℃、6 時間の水熱処理を行い、得られた粒子を洗浄・乾燥させることで、LN-BKT コア-シェルナノ粒子を得た。結晶相同定のために XRD 測定、コア-シェルナノ粒子の微細構造を観察するために、SEM、HRTEM、STEM-EDX での詳細な観察を行った。また、得られた LN-BKT コア-シェルナノ粒子を TiO_2 ナノ粒子と混合・成型し、上記と同様の条件で水熱処理を行うことによって、複合セラミックスを作成した(ソルボサーマル固化法)。その後、研磨、切断、電極付けを行うことで複合キャパシタを作製した。

【結果及び考察】XRD 測定結果から、ゾル-ゲル法により合成したナノ粒子は LN が主成分であることを確認し、また極微量の NiO を含むことが分かった。また、その後の水熱処理により合成したナノ粒子は、LN と BKT の二相が主成分であることを確認した。この LN-BKT 複合ナノ粒子を HRTEM 及び STEM-EDX により観察を行った結果、LN の表面に BKT 層の生成が確認でき、LN-BKT コア-シェル粒子であることを確認した[3]。通常 LN は塩基性水溶液中での水熱処理により、NiO と $\text{La}(\text{OH})_3$ に分解するが、BKT のコーティング層形成速度がそれを上回り、LN 表面を保護するため分解が抑制されたと考えられる。また、ソルボサーマル固化法により合成した複合セラミックスは主に LN と BKT の二相からなっており、BKT/LN 複合セラミックスが得られた。

【参考文献】

- [1] M. Hagiwara, et al., J. Mater. Sci., 50, 5970-5977(2015).
- [2] H. Funakubo, et al., J. Korean Phys. Soc., 62, 1055-1099 (2013).
- [3] Y. Hattori, et al., J. Ceram. Soc. Jpn., 126, 306-310 (2018).