

## 酸化物粒子と EDTA 錯体水溶液スラリー由来の 酸化物納豆型構造体の形態

### Morphology of oxide natto structure derived from metal oxide particles and metal-EDTA complex aqueous slurry

長岡技科大<sup>1</sup>, 中部キレスト<sup>2</sup> °齊藤 篤弘<sup>1</sup>, 中村 淳<sup>2,1</sup>, 小松 啓志<sup>1</sup>, 齋藤 秀俊<sup>1</sup>

Nagaoka Univ. Tech.<sup>1</sup>, Chubu Chelest Co., Ltd.<sup>2</sup>,

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

E-mail: hts@nagaokaut.ac.jp

【緒言】最近、金属イオンをキレートしたエチレンジアミン四酢酸(EDTA)錯体水溶液中に金属酸化物粒子を分散させたスラリーをスピコート法により塗布、焼成したところ局所的に新規な酸化物納豆型(金属酸化物粒子-繊維複合)構造体を得た。例えば触媒分野において、実用化した際の利便性向上のために触媒粉末を基材上に固定化すると気体との接触表面積が低下する懸念があるが<sup>1)</sup>、酸化物納豆型構造体は表面積を低下させずに触媒粉末を固定化する技術としての応用が期待できる。粒子濃度によりスラリーの粘度を変化させ Ni 合金発泡体の微細孔分布や骨格の厚さを制御した報告があり<sup>2)</sup>、我々が得た納豆型構造体の繊維状部分は EDTA 錯体水溶液由来であると仮定すると、粒子濃度により繊維状構造体の含有量や厚さを制御できるのではないかと考えた。本研究では Si 基板上に異なる粒子濃度のスラリーをスピコート法により塗布、焼成し得られた堆積物の形態、組成を調査した。

【実験方法】15 wt% EDTA-Er-H アンモニア水溶液中に  $Y_2O_3:Eu$  粉末 ([Y]:[Eu] = 92:8) を 5.1、9.5、18.8、31.0 vol% でそれぞれ分散させスラリーを作製した。スピコーター(ACT-300D II : アクティブ製)を用いて回転速度を 500 rpm とし、回転中にスラリーを Si(100)単結晶基板(50×50×1 mm<sup>3</sup>)上に 1 滴ずつ 0.3 ml 滴下することで、スラリーを基板上に拡散させて塗布した。スラリーを塗布した後、直ちに電気炉を用いて大気雰囲気下で 600℃まで加熱して 4 h 焼成を行い、焼成後室温まで自然冷却し試料を作製した。各試料の表面を走査電子顕微鏡(SEM)にて観察し、エネルギー分散型 X 線分光法(EDS)による元素マッピングにより Y、Er の有無を調査した。

【結果と考察】各粒子濃度で Si 基板上に作製した堆積物の表面 SEM 像から、酸化物粒子濃度 9.5、18.8 vol% で作製した試料表面に納豆型構造体が観察された。しかし、5.1、30.1 vol% で作製した試料表面には納豆型構造体は観察されなかった。Figure 1 に 9.5 vol% で作製した表面 SEM 像さらに Y、Er の EDS マッピング像をそれぞれ示す。納豆型構造体が観察され、粒子には Y、繊維には Er の分布が多数確認された。従って、納豆型構造体の繊維状部分は EDTA-Er-H アンモニア水溶液が基板の回転により  $Y_2O_3:Eu$  粒子間で延伸、乾燥するといった過程で形成されたものと考えられる。

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 JP18K04696 「酸化物納豆型構造触媒の創製」の助成を受けたものです。

- 1) Chi-Jung Chang et al., International Journal of Hydrogen Energy (2018) in-press.
- 2) Ho N.S.K et al, Materials Science and Engineering: A **687** (2017) 123-130.

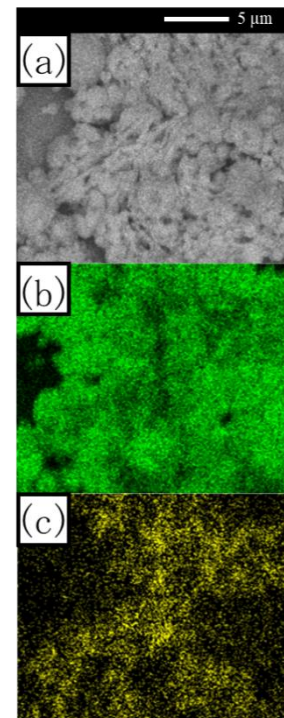


Fig.1. (a) Surface SEM images of obtained samples and (b) EDS elemental mapping showing (b)Y and (c) Er .