

大容量複合キャパシタに用いる導電性酸化物 LaNiO_3 ナノ粒子のゾル-ゲル法及びフラックス法による形態制御

Morphological Control of Conductive Oxide LaNiO_3 Nanoparticles by Sol-Gel Method and Flux Method for High-Capacitance Composite Capacitors

山梨大工¹ ○(B)久保 舞夏¹, 上野 慎太郎¹, 藤井一郎¹, 和田 智志¹

Univ. of Yamanashi¹, Maika Kubo¹, Shintaro Ueno¹, Ichiro Fujii¹, Satoshi Wada¹

E-mail: swada@yamanashi.ac.jp

【緒言】 現在、高性能な蓄電デバイスを実現するための研究が数多くおこなわれている。我々は出力密度に優れるセラミックキャパシタのエネルギー密度向上を目指し、大容量が取得可能な粒界絶縁型誘電体/導電体酸化物キャパシタの開発を試みている。導電性のペロブスカイト型酸化物を、同じくペロブスカイト型酸化物の誘電体で薄くエピタキシャル被覆した、均一な導電体(core)-誘電体(shell)粒子を合成し、これを緻密化することができれば、薄い粒界層での大容量の取得とエピタキシャル薄膜の持つ高い絶縁破壊電場の利用が可能になると考えられる。導電性酸化物にはペロブスカイト型構造を持つニッケル酸ランタン(LaNiO_3)を採用したが、ゾル-ゲル法などによって薄膜やナノ粒子を合成している例はあるものの¹⁾、粒子の形態制御に関する報告例は少ない。ゾル-ゲル法で合成した LaNiO_3 粒子は不定形の粒子が凝集体で得られるため、本研究ではこれにフラックス剤として NaCl を添加することで、粒径が均一かつ分散性の高い、緻密化に有利な立方体形状を有する LaNiO_3 粒子の合成を試みた。

【実験方法】 硝酸ランタン六水和物 [$\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$] 0.5 mmol 及び酢酸ニッケル四水和物 [$\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$] 0.5 mmol を 2-メトキシエタノールに溶解させ、前駆溶液を調製し、120°C で乾燥させ前駆ゲルを得た。これを 750°C で 6 時間熱処理し、黒色の粉体を得た。この粉体に対しフラックス剤として NaCl を添加し、これを 850°C で 6 時間熱処理した後、水を加えフラックスを溶解・除去し、乾燥させることによって黒色の試料粉体を得た。

【結果と考察】 Fig. 1 に得られた黒色の試料粉体の XRD パターンを示す。フラックスを添加する前の、ゾル-ゲル法によって合成した試料、及びゾル-ゲル法で得られた粉体に NaCl を添加しフラックス法によって合成した試料は、いずれも LaNiO_3 が生成物として得られている。 NaCl フラックス中 850°C、6 時間で保持することにより、 LaNiO_3 の回折ピークがよりシャープになっており、これはフラックス中で LaNiO_3 の結晶成長が促進されたためだと考えられる。Fig. 2 に得られた粒子の SEM 像を示す。粒子サイズと分散性は、ゾル-ゲル法によって合成された LaNiO_3 粒子では、約 150 nm の不定形の粒子が凝集しているのに対し、ゾル-ゲル法で得られた粉体を NaCl フラックス中で 850°C 保持した LaNiO_3 粒子では、粒子が約 200 nm まで成長していることがわかる。また凝集はあるものの、一部ではサイズが比較的均一で立方体に近い形態の粒子が生成していることが確認できる。ゾル-ゲル法で得られた LaNiO_3 が、フラックス中において溶解・再析出機構によって形態制御されたと考えられる。

【参考文献】

- 1) S. Miyake, S. Fujihara, and T. Kimura, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 21, 1525 (2001).

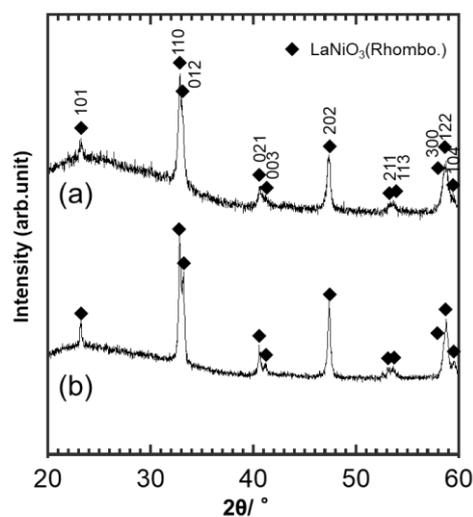


Fig. 1 XRD patterns of (a) the LaNiO_3 particles synthesized by the sol-gel method at 750°C for 6 h and (b) the LaNiO_3 particles kept at 850°C for 6 h in a NaCl flux.

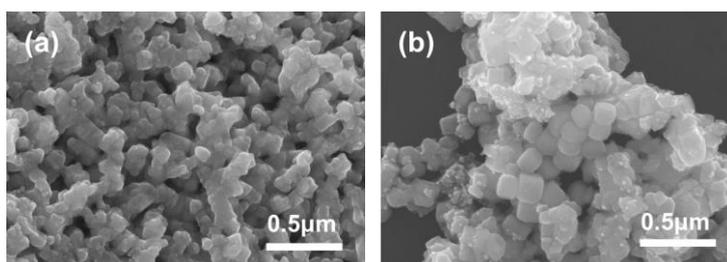


Fig. 2 SEM images of (a) the LaNiO_3 particles synthesized by the sol-gel method at 750°C for 6 h and (b) the LaNiO_3 particles kept at 850°C for 6 h in a NaCl flux.