

LaNiO₃-(Bi_{1/2}K_{1/2})TiO₃ core-shell ナノ粒子の合成及び 複合セラミックキャパシタの作製

Synthesis of LaNiO₃-(Bi_{1/2}K_{1/2})TiO₃ Core-shell Nanoparticles for High-performance Composite Capacitors

山梨大工¹, TDK(株)² ○(B)石垣 征彦¹, 上野 慎太郎¹, 藤井 一郎¹, 和田 智志¹, 大槻 史朗²,
古川 正仁²

Univ. of Yamanashi¹, TDK Corp.², °Masahiko Ishigaki¹, Shintaro Ueno¹, Ichiro Fujii¹, Satoshi
Wada¹, Shirou Ootsuki², Masahito Furukawa²

E-mail: swada@yamanashi.ac.jp

【緒論】我々はエナジーストレージの観点から、高速充放電、大容量の取得が可能な粒界絶縁(BL)型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 core-shell 構造の集合体と見なすことができ、core、shell とともに格子定数の近いペロブスカイト型酸化物を選択し、薄く均一なエピタキシャル絶縁層を core の導電性ナノ粒子表面に一樣に形成すれば、高い有効比誘電率と絶縁破壊電場を併せ持つ複合 BL キャパシタが作製可能になると考えられる。我々は core に導電性を示すペロブスカイト型の化合物として LaNiO₃(LN)を選択した。また薄膜の研究例[1]を参考に、shell の粒界絶縁層に(Bi_{1/2}K_{1/2})TiO₃ (BKT)、BaTiO₃ (BT)、NaNbO₃ (NN)などペロブスカイト型の化合物を選択し、core-shell ナノ粒子の合成、及び BL キャパシタの作製を試みた。

【実験方法】ここでは LN-BKT core-shell ナノ粒子について述べる。コアとなる LN は sol-gel 法或いは flux 法により合成した。La(NO₃)₃·6H₂O、Ni(CH₃COO)₂·4H₂O を 2-メトキシエタノールに溶解後、120°C で十分に乾燥させ、flux 法の場合は、ここに NaCl を加えた。その後、850°C、6 時間の熱処理により LN ナノ粒子を得た。sol-gel 法で合成した LN は La/Ti =1(すなわち LN/BKT=1)、flux 法で合成した LN は La/Ti=5(すなわち LN/BKT=5)となるよう混合し、Bi(NO₃)₃·5H₂O、KOH 水溶液に加え、160°C、6 時間の水熱処理を行うことで LN(core)-BKT(shell)ナノ粒子を得た。これらの粒子はソルボサーマル固化法による複合キャパシタの作製に使用した。

【結果及び考察】XRD 測定結果(Fig. 1)より、sol-gel 法、flux 法、いずれについても LN の生成を確認した。また水熱処理後の LN-BKT 複合粒子については、主に LN と BKT の二相からなることを確認した。通常 LN は塩基性水溶液中での水熱処理により NiO と La(OH)₃ に分解するが、BKT の shell 層の形成が起こったため、LN の分解を抑制されたと考えられる。flux 法で合成した LN 及びその LN(core)-BKT(shell)ナノ粒子の FESEM 像を(Fig. 2)に示す。Fig. 2(b)では、水熱処理後の LN 直方体粒子表面に微粒子が生成していることが確認でき、XRD の結果を考慮すると、LN ナノ粒子表面において BKT shell 層の形成が期待される。

[1] M. Hagiwara, et al., *J. Mater. Sci.*, 50, 5970-5977 (2015).

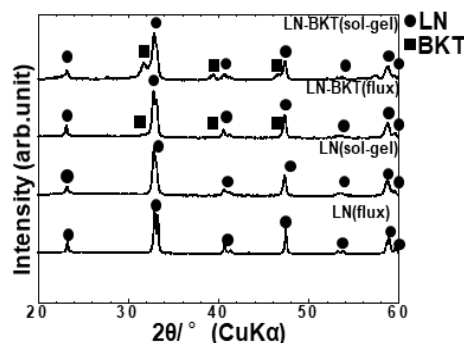


Fig. 1 XRD patterns of the LN and LN(core)-BKT(shell) nanoparticles.

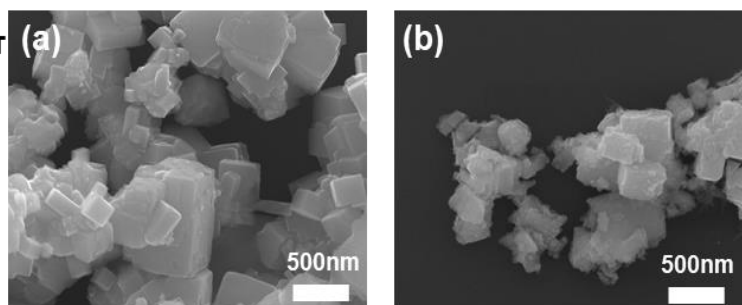


Fig. 2 FESEM images of (a) the LN nanoparticles and (b) the LN(core)-BKT(shell) nanoparticles with the molar ratio of LN/BKT=5. The LN(core) particles synthesized by the flux method are shown here.