

9 元系ハイエントロピー金属酸化物ナノ粒子の超臨界水フロー合成と同定

(京大院理¹・京大白眉セ²・JST さきがけ³・九大 URC⁴・九大院工⁵・JASRI SPring-8⁶・
 阪府大院理⁷) ○神田 凌平¹・草田康平^{1,2,3}・鳥山 誉亮⁴・山本 知一⁴・松村 晶^{4,5}・
 河口 彰吾⁶・久保田 佳基⁷・北川 宏¹

Supercritical-Water Synthesis and Characterization of Nonary High-Entropy Metal Oxide Nanoparticles (¹Grad. Sch. Sci., Kyoto U., ²Hakubi Center, Kyoto U., ³JST-PRESTO, ⁴URC, Kyushu U. ⁵Grad. Sch. Eng., Kyusyu U., ⁶JASRI SPring-8, ⁷Grad. Sch. Sci., Osaka Pref. U.)
 ○ Ryohei Kanda¹, Kohei Kusada^{1,2,3}, Takaaki Toriyama⁴, Tomokazu Yamamoto⁴, Sho Matsumura^{4,5}, Shogo Kawaguchi⁶, Yoshiki Kubota⁷, Hiroshi Kitagawa¹

High-entropy oxides (HEOs) which are complex oxides containing five or more metal cations at around the same molar ratio in a single phase have attracted much attention because of their unique chemical and physical properties, for example, thermoelectric and dielectric properties. Although HEO nanoparticles (NPs) are considered to be a new class of materials such as catalysts, the syntheses of HEO NPs have not been well developed because it is difficult to homogeneously mix diverse elements with nano-sized crystals.

Here, we succeeded for the first time in synthesizing HEO NPs consisting of nine 3d transition elements (Sc, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, and Zn) by supercritical water in a flow reactor. The formation of a single phase of complex oxide homogeneously consisting of all the nine elements was confirmed by scanning transmission electron microscopy (STEM) and energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS). X-ray diffraction (XRD) analysis revealed that all the nine 3d transition metals formed a solid-solution spinel structure, which is the same as Fe₃O₄, at equimolar amounts. *Keywords: High-Entropy Oxide, Nanoparticles, Spinel, 3d Transition Elements, Flow Synthesis*

近年、等モル組成程度で単一の結晶構造内に5つ以上の金属元素が均一に混ざった酸化物はハイエントロピー酸化物(HEO)と呼ばれ、熱電特性や誘電特性など化学的、物理的に特異な物性を示すことで注目を集めている。HEOをナノサイズ化することで、新規触媒をはじめとして新たな材料の開発が期待されるが、HEOナノ粒子(NPs)は、多様な元素を均一に混合しつつ、粒径をナノサイズで維持することが困難であるため合成法が確立していない。

我々は超臨界水を用いた流通式合成法に着目し、3d 金属元素9種(Sc, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn)を用いた HEO NPs の合成に初めて成功した。走査透過型電子顕微鏡観察およびエネルギー分散型

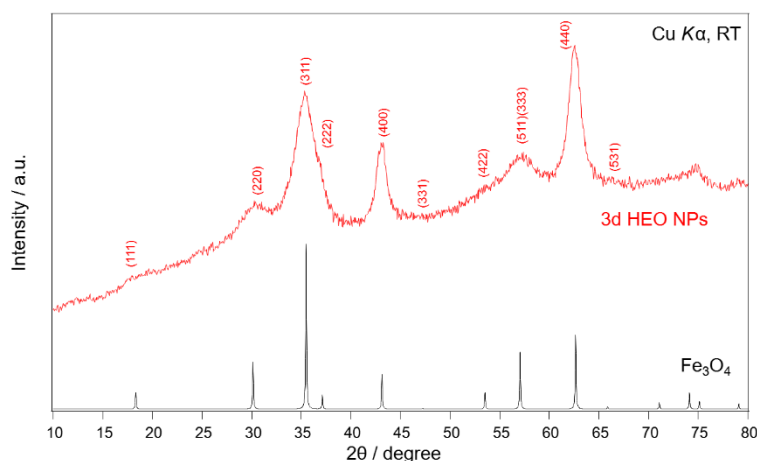


Figure: Powder XRD pattern of 3d HEO NPs

X線分光法により全9元素が単一の結晶相内に均質に分布することが確認され、X線回折分析により3d遷移金属全9種が等モル程度で固溶した場合、Fe₃O₄と同様に、スピネル構造を有することが明らかとなった(**Figure**)。