

高配向性オキシアパタイト型ランタンシリケートの作製とその異方的特性評価

平井, 拳也 / HIRAI, Kenya

(出版者 / Publisher)

法政大学大学院理工学・工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

法政大学大学院紀要. 理工学・工学研究科編 / 法政大学大学院紀要. 理工学・工学研究科編

(巻 / Volume)

57

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

2

(発行年 / Year)

2016-03-24

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00013665>

高配向性オキシアパタイト型ランタンシリケートの 作製とその異方的特性評価

FABRICATION OF HIGHLY-TEXTURED LANTHANUM SILICATE OXYAPATITE CERAMICS
AND CHARACTERIZATION OF THEIR ANISOTROPIC PROPERTIES

平井 拳也

Kenya HIRAI

指導教員 明石孝也

法政大学大学院理工学研究科応用化学専攻修士課程

The *c*-axis-oriented bulk ceramics of lanthanum silicate oxyapatite were successfully fabricated by slip casting under a strong magnetic field using highly-sinterable powder synthesized by solid state reaction method. The Lotgering factor, which is an index to evaluate the degree of texturing from XRD pattern, along the (00*l*) was 0.68 for a densified polycrystalline specimen sintered at 1873 K for 10 h. Predominant grain growth along the *c*-axis was observed from the grain morphology. The anisotropic properties of the textured lanthanum silicate oxyapatite were also characterized from the thermal and electric conductivities.

Key Words : Solid Oxide Fuel Cells, Oxide-ion conductor, Oxyapatite, Magnetic Field, Anisotropy

1. はじめに

オキシアパタイト型ランタンシリケート(LSO)は高い酸化物イオン伝導度と優れた化学的安定性から、中低温域作動の固体酸化物形燃料電池や酸素センサーの固体電解質としての応用が期待されている[1]。この材料は酸化物イオン伝導度に結晶方位依存性があり、*c* 軸方向に高いことが知られている。したがって高い酸化物イオン伝導度を有するバルク体作製を目的として単結晶成長や配向多結晶体の作製が試みられている[2][3]。他方で、LSOは単相合成が困難かつ難焼結性であることが指摘されており、大きな緻密体を作製して異方的特性を評価した報告例は少ない。我々のグループでは、大気中での秤量や水中での混合が可能な水酸化ランタンと石英シリカを原料に用いた固相反応法と遊星ボールミルを利用して、高焼結性の単相 LSO 粉末の大量合成に成功している[4]。

本研究では、その手法により LSO 粉を合成し、セラミックスの配向制御に強磁場印加コロイドプロセスを適用して、高い *c* 軸配向性を有する緻密なバルク焼結体を作製し、その異方的特性を評価した。

2. 実験方法

既報[4]の方法に従い、水酸化ランタンと石英型シリカを水溶媒中で 6 h 湿式ボールミル混合した後、ろ過・

乾燥したものを大気中 1673 K, 10 h で焼して LSO を合成した。この粉末に固相濃度が 5 vol%になるよう溶媒と分散剤を加え遊星ボールミル粉砕・混合して高分散スラリーを調製した。合成した粉末、粉砕した粉末のキャラクタリゼーションには粉末 X 線回折 (XRD) と走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いた。

スラリーを多孔質アルミナプレート上に置いた型枠内に流し込み 12 T の強磁場を印加しながら固化させた。得られた成型体は冷間等方圧プレスにより圧縮し、分散剤除去のため 1073 K, 5 h で仮焼した固体を 1873 K, 10 h で焼結し緻密セラミックスを作製した。緻密セラミックスのキャラクタリゼーションには XRD と SEM を用いた。また、作製した焼結体の全電気伝導度、熱膨張率、熱伝導度を測定し、その異方性を評価した。

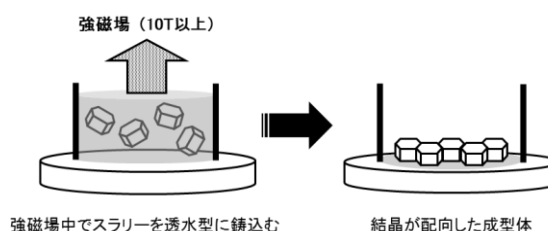


図1 磁場中鋳込み成形の概略図

3. 結果と考察

図2に水酸化ランタンとシリカから合成した LSO の

XRD パターンを示す。水中の湿式混合の後 1673 K, 10 h の熱処理で単相の LSO を合成した。

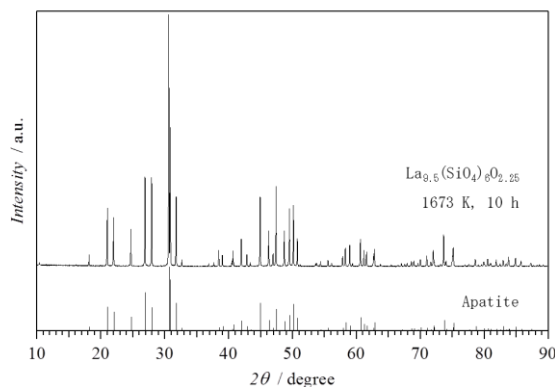


図2 湿式混合後 1673 K, 10 h の熱処理で固相反応法により合成された LSO 粉末の XRD パターン

図3に合成・粉砕した粉末の SEM 像を示す。ネックを形成し凝結した合成粉末を遊星ボール粉砕することで、磁場配向かつ焼結しやすい粉末が得られた。

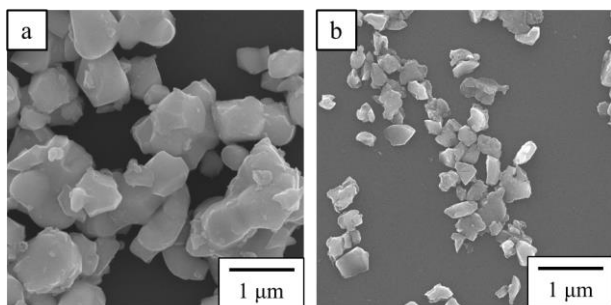


図3 (a) 湿式混合後 1673 K, 10 h の熱処理で固相反応法により合成した LSO 粉末の SEM 像, (b) (a)粉末を遊星ボールミルにより粉砕し作製したスラリー中粒子の SEM 像

図4に鋳込み成形により作製した焼結体の XRD パターンを示す。図4(a)無配向体と比べて、(b)磁場印加垂直方向面では(00l)ピーク強度が相対的に増加し、(c)磁場印加水平方向面では(00l)ピーク強度が相対的に減少した。この結果は磁場印加方向にc軸が配向していることを意味する。また、XRD パターンから計算される配向度を示すロットゲーリングファクターは $f_L = 0.68$ であった。

図5に強磁場中で鋳込み成形し 1873 K, 10 h で熱処理した焼結体断面の微細組織の SEM 像を示す。磁場を用いなかった無配向焼結体では粒成長方向に異方性はみられなかったが、図5に示すように作製したc軸配向焼結体では大きく成長した粒子で磁場印加方向に沿った異方性のある成長傾向が確認された。さらに、c軸配向焼結体では電気伝導度についても異方的特性が認められた。当日の発表では熱伝導度、熱膨張率の異方的特性につい

ても報告する。

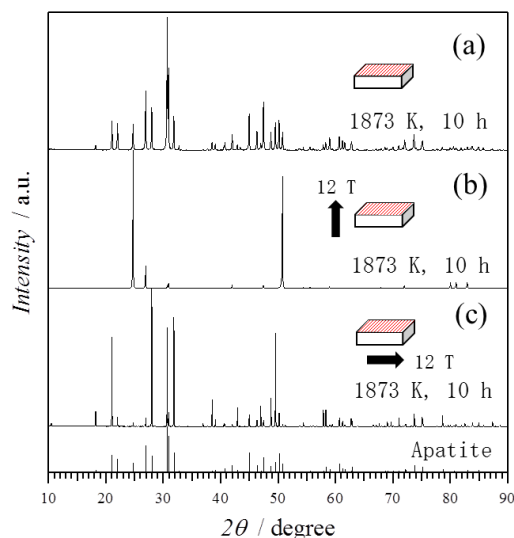


図4 作製した焼結体の XRD パターン

(a) 無磁場中で鋳込み成形した焼結体, (b) 強磁場中で鋳込み成形した焼結体の磁場印加方向垂直面, (c) 強磁場中で鋳込み成形した焼結体の磁場印加方向水平面

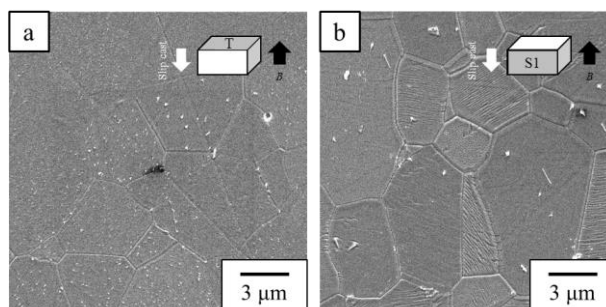


図5 強磁場中で鋳込み成形し 1873 K, 10 h で熱処理した焼結体断面の微細組織の SEM 像 (a) 磁場印加方向垂直面, (b) 磁場印加方向平行面

4. 結論

水酸化ランタンと石英型シリカを用いた固相反応法により単相 LSO を合成した。合成した LSO 粉を遊星ボールミル粉砕することにより、磁場配向かつ焼結しやすい粉末スラリーを作製した。作製したスラリーを強磁場中で鋳込み成形し、1873 K, 10 h で焼成することで配向焼結体を作製した。配向焼結体の XRD パターンから計算されるロットゲーリングファクター $f_L = 0.68$ であった。さらに、微細組織観察から配向焼結体内の結晶粒はc軸方向へ優先的に粒成長していた。

参考文献

- 1) S.Nakayama et al., J. Eur. Ceram. Soc., 18, 1413-1418 (1998)
- 2) S.Nakayama et al., J. Eur. Ceram. Soc., 33 207-210 (2013)
- 3) K.Fukuda et al., Chem. Mater., 25, 2154-2162 (2013)
- 4) K. Kobayashi et al., J. Ceram. Soc. Jpn., 123, 4, 274-279 (2015)