

Ag/Cu 形ゼオライトの PL 挙動

PL behavior of Ag/Cu type zeolite

弘前大院理工 ○鳴海旬哉 富岡凌輔 目黒晴輝 佐藤大和 宮永崇史 鈴木裕史

Grad. Sch. of Sci. & Technol., Hirosaki Univ.

○Junya Narumi, Ryosuke Tomioka, Haruki Meguro, Yamato Sato,

Takafumi Miyanaga, Yushi Suzuki

E-mail: uc@hirosaki-u.ac.jp

[諸言] Ag をゼオライトにドーブした Ag 形ゼオライトは、加熱等の処理により強いフォトルミネッセンス(PL)を発現する[1]。この材料はレアアースを使用しないため広範な応用が期待されている。我々は様々な測定方法を用いて PL 発現機構の解明を試みてきた。そして、X 線吸収端微細構造分析(XAFS)により加熱等の処理中 Ag クラスターが形成され、PL が観測される大気共存下・室温において形成されたクラスターが崩壊していることを解明した[2]。さらに、Ag と Ni, Co, Cu を共置換することにより Ag 形ゼオライト由来の PL 強度が減衰することが確認された。Ni, Co, Cu イオンはスーパーケージよりもソーダライトケージに優先的に配位し、Ag イオンよりもソーダライトケージに配位しやすいことが報告されていることから[3,4]、Ag イオンがソーダライトケージに配位することが PL 発現の原因ではないかと推定される。本実験では、使用する硫酸銅水溶液の濃度を変化させた Ag/Cu 共置換ゼオライトを作製し、PL 測定・EPMA 測定を行い、以前の研究結果と比較することで、共置換原子数と PL 強度の関係性について調査を行った。さらに、共置換ゼオライトについて未加熱と加熱後の XAFS 測定を行い、Ag の配位位置を明らかにすることを試みた。これらの結果から、Ag 形ゼオライトの PL 機構を解明することを目的とした。

[実験方法] イオン交換は、市販の Na-Y 型ゼオライト[東ソー株式会社製、合成ゼオライト]を脱イオン水で pH 7 付近になるまで洗浄した後、行った。共置換ゼオライトは、硝酸銀水溶液と硫酸銅水溶液を混合した溶液を使用し、温度 25 °C で 24 時間攪拌を行い作製した。イオン交換後、大気中で 24 時間風乾した。PL 測定は、500 °C で 3 時間加熱した後に、分光蛍光光度計(F-2700 形分光蛍光光度計 日立ハイテクサイエンス社製)を用いて行った。EPMA 測定は、室温で硬化するエポキシ樹脂にゼオライトを封入後研磨し、粒子断面を露出させエネルギー分散型 EPMA(EDS)で電子プローブマイクロアナライザ(JXA-8230 JEOL 製)を用いて定量分析を行った。

[結果]Fig. 1 に Ag 単置換ゼオライト、Ag/Ni, Co, Cu 共置換ゼオライトにおけるユニットセル当たりの(a) Ag、(b) T (Ni, Co, Cu)置換数と PL 強度の関係性をプロットした図を示す。PL 強度は、Ag 置換数には依存しておらず、共置換原子数に依存していることが明らかになった。XAFS 測定は現在解析中であるが、Ag の配位位置が明らかになれば、Ag 形ゼオライトの PL は Ag イオンがソーダライトケージに配位することが PL 発現の原因であるという推定を裏付ける結果となると予想する。詳細は発表当日に報告する。

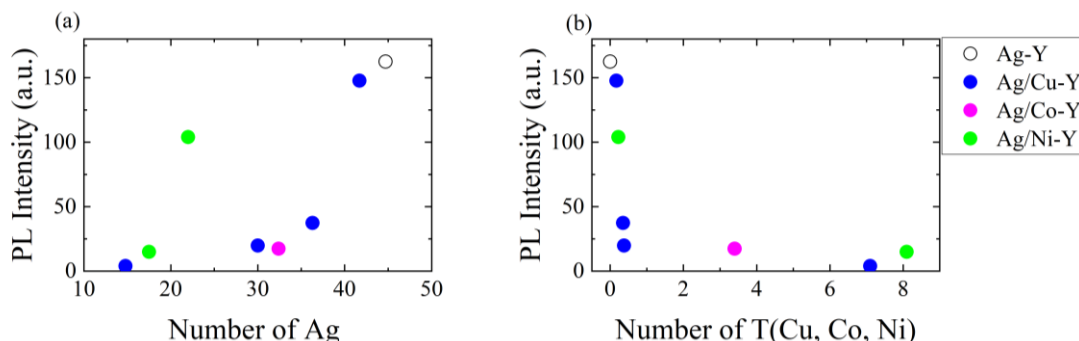


Fig.1 Relationship between the number of (a) Ag and (b) T (Ni, Co, Cu) replaced per unit cell and PL intensity.

[1] H. Hoshino, Y. Sannohe, Y. Suzuki, T. Azuhata, T. Miyanaga, K. Yaginuma, M. Itho, T. Shigeno, Y. Osawa, Y. Kimura, J. Phys. Soc. Jpn., Vol. 77, No. 6, 2008, 064712-1 - 064712-7.

[2] A. Nakamura, M. Narita, S. Narita, Y. Suzuki, T. Miyanaga, Journal of Physics: Conference Series 502 (2014), Apr. 2014, 012033-1 - 012033-4.

[3] W. Henao-Sierra et al. / Microporous and Mesoporous Materials 265 (2018) p250-257.

[4] M. Afzal et al. / Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, Vol. 62 (2000) 277-284