

アルミニウムドープ ZnO の水熱合成における添加剤の影響

(岐阜大学¹、岐阜県セラミックス研究所²、河合石灰工業³) ○水野すみれ¹・
尾畑成造²・木戸健二³・吉田道之¹・櫻田 修¹

【緒言】 近年、職場や家庭、自動車などの室内温度の上昇抑制や省エネルギー化を目的として、窓ガラス等に太陽光中の近赤外線 (NIR) を遮蔽する機能を持たせる方法が検討されている。遮蔽する材料としてアルミニウム (Al) をドープした酸化亜鉛 (ZnO) やインジウムをドープした酸化スズがある。本研究室ではAlドープZnO (AZO) に着目し、水熱合成法でAZOを合成する際の温度、アルミニウム添加量、溶液のpHについて検討してきた。その中で、合成時に使用するpH調整剤の違いによりAZO粒子のNIR領域の反射特性が変化することを報告した。本研究では、引き続きpH調整剤の種類ならびにpHの調整方法が生成物やNIRの反射特性に与える影響について検討した。

【実験】 硝酸亜鉛水溶液と硝酸アルミニウム水溶液を所定量分取し、種々pH調整剤 [アンモニア水(NH₃)、水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)、水酸化テトラエチルアンモニウム(TEAH)、水酸化テトラプロピルアンモニウム(TPAH)] あるいは尿素を添加した後、水熱処理を行い、合成粉末を得た。得られた粉末についてXRD測定、UV-Vis-NIR測定、SEM観察を行った。

【結果と考察】 XRD測定の結果、Alを5 mol%添加し、NH₃、TMAH、TEAH、TPAHを用いてpH 10に調整後、160°Cで合成した試料はいずれも ZnO のピークが認められた。NH₃を除くTMAH、TEAH、TPAHを添加して作製した試料では、98%以上の収率でZnOが合成できたが、アルミン酸亜鉛 (Gahnite: ZnAl₂O₄)の生成も認められた。一方、NH₃をpH調整剤として用いた場合には、収率は50%ではあったもののGahniteの生成が認められなかった。そこで、ZnO単層が得られたNH₃をpH調整剤としてAl添加量を変化させてAZOの合成を行った。生成したAZO粉末のNIR域での反射率はAl添加量とともに減少し2 mol%で最小値を示した後、反射率が徐々に上昇した。

また、pHの調整方法として、尿素を使用し、水熱合成時の加熱に伴い反応系内の pH を均一に上昇させる方法を試みた。Alの添加量を2 mol%としてNH₃で pH 6に調整した溶液に、水熱合成後に pH が7になるように尿素水溶液を添加して水熱合成を行った。得られた粉末の XRD 測定結果と紫外可視近赤外反射スペクトルをそれぞれ Fig. 1 及び Fig. 2 に示す。Fig. 1 に示すとおり 160°Cで合成した試料は、塩基性炭酸亜鉛 (Zn₅(OH)₆(CO₃)₂) に帰属するピークのみであったが、200°C以上で水熱処理することにより ZnO の生成が認められた。また、Fig. 2 より 160°Cで合成した試料は NIR 域での反射率が高いものの、200°C、240°Cで合成した試料では NIR 域の反射率が大きく低下した。この200°C、240°Cで合成した試料は NH₃のみで合成して得られた粉末よりも優れた NIR 反射特性を示した。

1) 河合、他、日本セラミックス協会 第52回セラミックス基礎科学討論会、講演番号 2C16 (2014).

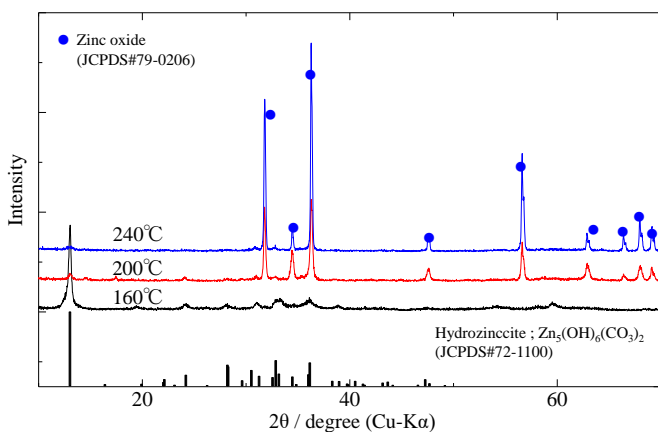


Fig. 1 XRD patterns of the powders synthesized from the solutions with NH₃ and urea at various temperatures.

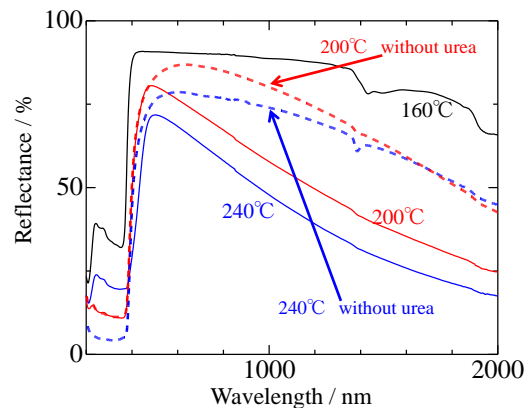


Fig. 2 Reflectance spectra of the powders synthesized from the solution with NH₃ and urea at various temperatures.