

水熱合成法における水酸化イットリウムナノチューブの生成条件

(千葉大院融合) ○倉成菜穂子・大川祐輔・柴史之

【緒言】 水酸化イットリウム ($\text{Y}(\text{OH})_3$) は、加熱脱水処理により、希土類ドーブ蛍光体の母体材料として重要な酸化イットリウム (Y_2O_3) に変換される。 Y_2O_3 蛍光体は、赤色発光する $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ がよく知られているが、近年ではレーザー材料としての応用も注目されている。一方、 $\text{Y}(\text{OH})_3$ は Y_2O_3 の前駆材料であるので、 Y_2O_3 蛍光体粒子のサイズ・形態制御には、 $\text{Y}(\text{OH})_3$ の合成プロセスを適切にコントロールすることが重要であると考えられる。前報^{1,2)}において、 YCl_3 水溶液に NaOH を2段階に分けて添加した後、水熱反応させることで、 $\text{Y}(\text{OH})_3$ ナノチューブが選択的に生成すること、またこの時間間隔によりナノチューブのサイズが制御できることを報告した。今回は $\text{Y}(\text{OH})_3$ ナノチューブの大量合成を念頭に、 YCl_3 濃度の高い条件範囲でのナノチューブ生成挙動を検討したので報告する。

【実験】 $\text{YCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ($x \text{ mol}$) を 14 mL の蒸留水に溶解した。25°C の攪拌条件下で、1 mL の NaOH ($C \text{ mol/L}$) をホールピペットで添加した。所定時間 ($\Delta t \text{ s}$) 経過後、5 mL の NaOH を追加添加した。この混合液をオートクレーブに移し、150°C で 72 h 静置した。得られた粒子は遠心洗浄した後、透過型電子顕微鏡で観察を行った。粒子合成においては、前報^{1,2)}の標準条件 ($x=1 \times 10^{-3} \text{ mol}$, $C=1 \text{ mol/L}$, $\Delta t=120 \text{ s}$) を基準として、 YCl_3 増やした条件での NaOH 添加条件の効果を検討した。

【結果】 YCl_3 $1 \times 10^{-3} \text{ mol}$ の条件では、前報^{1,2)}と同様、 $\Delta t=0 \text{ s}$ では薄片状の粒子のみが生成する一方で、 $\Delta t=120 \text{ s}$ の場合は、長さ約 5 μm 、太さ約 130 nm の $\text{Y}(\text{OH})_3$ ナノチューブが生成した (Fig. 1(a))。これに対しては NaOH を 1 mL 添加した時の pH 領域で生成する $\text{Y}_2(\text{OH})_5\text{Cl}$ が、 $\text{Y}(\text{OH})_3$ の核の前駆体として作用していることが示唆されている¹⁾。一方で YCl_3 を濃くすると ($x=4 \times 10^{-3} \text{ mol}$)、1段階添加 ($\Delta t=0 \text{ s}$) でも $\text{Y}(\text{OH})_3$ ナノチューブが生成した (Fig. 1(b))。この場合も Δt を変えることでナノチューブの

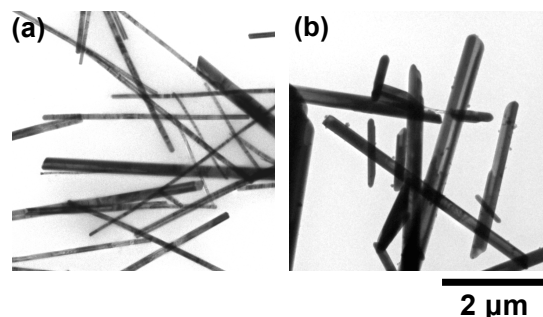


Fig. 1 TEM images of $\text{Y}(\text{OH})_3$ nanotubes prepared under the conditions of (a) $x=1 \times 10^{-3} \text{ mol}$ ($\Delta t=120 \text{ s}$) and (b) $x=4 \times 10^{-3} \text{ mol}$ ($\Delta t=0 \text{ s}$).

サイズが変化することから、基本的な生成機構は、 $x=1 \times 10^{-3} \text{ mol}$ の場合と同様であると推測される。 YCl_3 の仕込み量が多くなると、 Cl^- 濃度も高くなるので、高 pH 条件でも、 $\text{Y}_2(\text{OH})_5\text{Cl}$ 等の $\text{Y}(\text{OH})_3$ の核生成に寄与する化学種が生成しやすくなるものと考えられるが、詳細は現在検討中である。

【参考文献】 1) F. Shiba, T. Tamagawa, T. Kojima, Y. Okawa, *CrystEngComm*, **15**, 1061 (2013).
2) 玉川, 大川, 柴, 第 63 回コロイドおよび界面化学討論会講演要旨集, p. 192 (京都, 2011).

Hydrothermal Conditions for the Synthesis of Yttrium Hydroxide Nanotubes

N. KURANARI, Y. OKAWA, F. SHIBA (Chiba Univ., shiba@faculty.chiba-u.jp)

Effect of the YCl_3 content on hydrothermal synthesis of $\text{Y}(\text{OH})_3$ nanotubes was investigated. Two-step addition of NaOH with an interval time was required to obtain nanotubes when $1 \times 10^{-3} \text{ mol}$ of YCl_3 was subjected to the synthesis, while they formed even without the interval of when the YCl_3 content was increased to $4 \times 10^{-3} \text{ mol}$. In the both cases, however, the size of nanotubes was varied by the interval time between NaOH additions, suggesting that the formation process could be basically same.