

## ガラスからのゼオライト合成とガラス中 Sr の局所構造評価 Synthesis of Zeolite from Glass and Investigation of Local Structure of Sr in the Glass

辻口 雅人<sup>a</sup>, 佐藤 充孝<sup>b</sup>, 中平 敦<sup>b,c</sup>  
Masato Tsujiguchi<sup>a</sup>, Mitsutaka Sato<sup>b</sup>, Atsushi Nakahira<sup>b,c</sup>

<sup>a</sup> シャープ(株), <sup>b</sup> 東北大学金属材料研究所附属研究施設関西センター, <sup>c</sup> 大阪府立大学  
<sup>a</sup>Sharp Corporation, <sup>b</sup>Kansai Center, IMR, Tohoku University, <sup>c</sup>Osaka Prefecture University

液晶ディスプレイに使用されているガラスを原料として作製したゼオライトと、原料のガラス中 Sr の局所構造を XAFS により調べた。その結果、合成前のガラス原料酸処理によって Sr 濃度は変化するが局所構造に変化はないことがわかった。また、酸処理条件を変えゼオライトの結晶化度が向上した試料の Sr 局所構造は市販 A 型ゼオライトの Sr 置換品に近づく傾向が見られ、Sr の局所構造は A 型ゼオライトの Sr 置換品と類似の構造をとることを確認した。

キーワード： ガラス、Sr、局所構造、XAFS

### 背景と研究目的：

将来的に排出量が急激に増加すると予測される液晶ディスプレイに使用されているアルミノホウケイ酸ガラスを資源として有効に利用することを見据え、我々はアルミノホウケイ酸ガラスを原料とし、アルカリ水熱処理によりゼオライトを合成する方法を研究してきた。これにより、軟化温度の高いアルミノホウケイ酸ガラスを加熱軟化せずに新たな機能材料としての再資源化が可能となる。これまでの研究結果から、200℃以下の水熱処理によりゼオライトの生成が可能であることがわかっている[1]。

水熱合成メカニズムについて調べた結果、水熱処理前にガラス原料に酸処理を施すことにより、続く水熱処理でのゼオライトの生成量が増加することが明らかとなっている。さらに、酸処理では SiO<sub>2</sub> 以外の成分が数%酸溶液中に溶出することがわかっている。

本申請では、水熱処理の前処理である酸溶出処理前後の Sr 近傍の局所構造を XAFS により詳細に調べることにより、ゼオライトの生成に Sr イオンがどのように影響を及ぼしているのか、また、合成条件がゼオライトの生成に及ぼす影響を明らかにすることを目的とする。

### 実験：

市販のアルミノホウケイ酸ガラスに硝酸処理を施し、Sr を溶出させた。このとき溶出時間を変え、成分溶出量が異なるサンプルを複数作製した。それぞれの試料について、Si/Al モル比を調整するため、アルミン酸ナトリウムを添加し、NaOH 水溶液中で 95℃での水熱処理を施した。X 線回折にて生成相を確認した結果、A 型ゼオライトが生成しており、酸処理時間が長いほど、結晶化度は増加していることを確認した。作製した試料の Sr 元素(K 殻 16.106 keV)の局所構造解析を調査するため、ビームライン BL14B2 を使用して Si(111)の結晶面を用い、透過法により XAFS 測定を行った。参照試料として市販の A 型ゼオライトを塩化ストロンチウム溶液に浸漬させ作製した Sr 置換型 A 型ゼオライトを用いた。

### 結果および考察：

図 1 に硝酸処理時間を変化させたガラス中 Sr の K 殻吸収端における XANES 領域の測定結果を示す。Sr の XANES スペクトルに酸処理時間による差は見られなかった。この結果から、酸処理によって Sr 濃度は変化するが局所構造に変化はないことがわかった。図 2 に酸処理ガラス、処理時間の異なる酸処理ガラスから合成した A 型ゼオライト、Sr 置換型市販 A 型ゼオライト参照試料における XANES 領域の測定結果を示す。酸処理時間が短いガラスから合成したゼオライトはガラスと類似の Sr 局所構造をとり、酸処理時間を長くし、ゼオライトの結晶化度が向上した試料は

参照試料である Sr 置換型市販 A 型ゼオライトに近づく傾向が見られた。この結果から、ガラスから合成したゼオライトにおいて Sr の局所構造は Sr 置換型市販 A 型ゼオライトと類似の構造をとることが確認された。

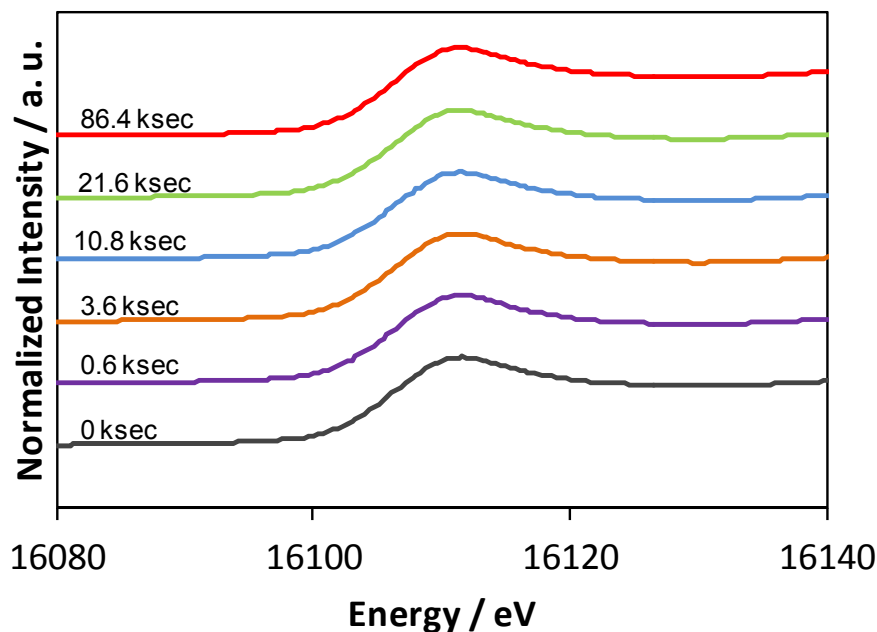


図 1. 硝酸処理時間を変化させたガラス中 Sr の K 殻吸収端における XANES スペクトル

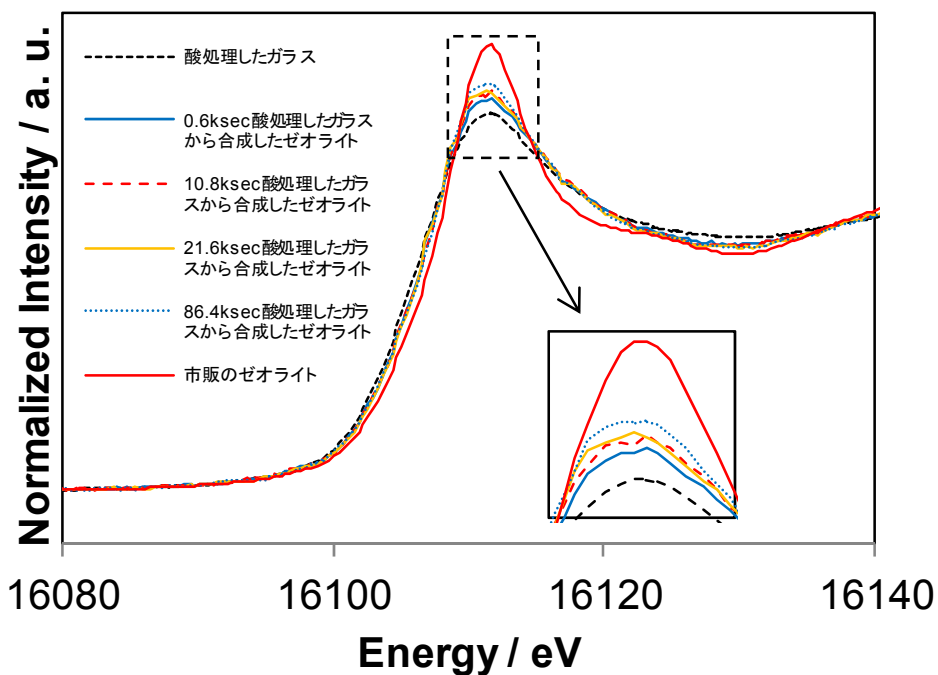


図 2. 酸処理ガラス、処理時間の異なる酸処理ガラスから合成した A 型ゼオライト、Sr 置換型市販 A 型ゼオライト参照試料における XANES スペクトル

参考文献：

- [1] 辻口雅人、他、材料 **62**, 357 (2013).