MLF Experimental Report	提出日 Date of Report 2012 年 2 月 20 日
課題番号 Project No. 2010AM0007 実験課題名 Title of experiment PbO-ZnO-B_2O_3系ガラスの中性子線構造解析 実験責任者名 Name of principal investigator 椋木　敦 所属 Affiliation 日揮株式会社	装置責任者 Name of responsible person 石垣　徹 装置名 Name of Instrument/ (BL No.) iMATERIA/BL20 実施日 Date of Experiment 2010 年 6 月 16 日

試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、結論等を、記述して下さい。（適宜、図表添付のこと）
Please report your samples, experimental method and results, discussion and conclusions.　Please add figures and tables for better explanation.

1. 試料 Name of sample(s) and chemical formula, or compositions including physical form.

ヨウ素を含有する BPI ガラス固化体、組成を単純化した 3 成分ガラス及び 2 成分ガラスの 3 種類のガラス試料を準備し、測定対象とする。組成はそれぞれ以下の通りである。

・PbO：Bi_2O_3：ZnO：B_2O_3：I＝22.1：1.0：1.6：19.8：1.0 mol%

・PbO：ZnO：B_2O_3 ＝65.0：5.0：30.0 mol%

・PbO：B_2O_3 ＝66.7：33.3 mol%

2. 実験方法及び結果 （実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。）
Experimental method and results.　If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.

(1) 実験方法

物質・生命科学実験施設（MLF）内にある BL20 茨城県材料構造解析装置（iMATERIA）において、上記試料の中性子線回折試験（各試料の照射時間：3 時間）を実施した。中性子線照射に際しては、分析試料はバナジウム管に装填した後、インジウムで密封した。

なお、ホウ素の周辺構造を詳細に解析するため、中性子吸収断面積が小さい ^{11}B エンリッチ試料（Boron 11 Acid, IE=99.76%）を入手し、分析試料を作製した。

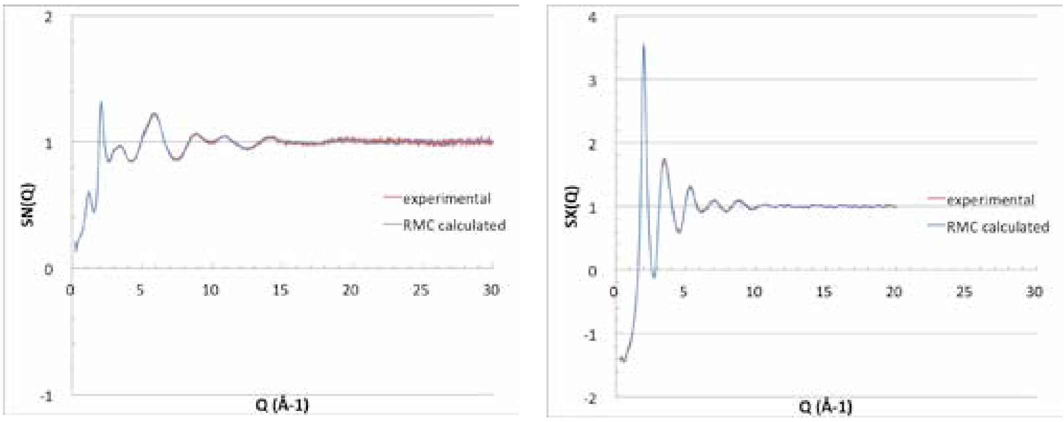
(2) 解析評価結果

①2 成分ガラス（66.7PbO+33.3B_2O_3）、②3 成分ガラス（65PbO+30B_2O_3+5ZnO）及び③BPI ガラスについて、中性子及び X 線構造因子を図-1～図-3 に示す。いずれのガラスについても q=35～40A^{-1} 程度に至る高 q 領域を含んだ広範囲で精度の高い構造因子が得られた。ガラス構造モデル構築のための逆モンテカルロ（RMC）計算収束後の構造因子は、いずれも実験により得られた曲線と全域で良い一致を示し、ガラス構造について良好な再現性を達成したことが示唆される。なお、X 線構造因子については、SPring-8 BL04B2 回折計により得られたものである。

本研究課題により得られた $S_N(Q)$を従来の（中性子実験を含めない）RMC 計算モデルによるものと比較すると、$S_N(Q)$の形状に明瞭な差異が見られた。一方、$S_X(Q)$の形状には変化が確認されなかったことから、BPI ガラス固化体及びその関連ガラスのような軽元素（ホウ素）を含む重元素系ガラスの構造

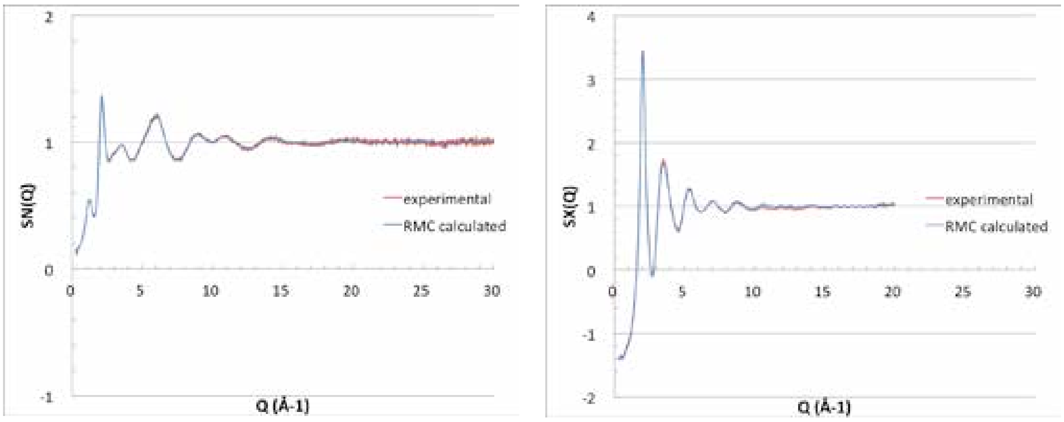
2. 実験方法及び結果（つづき） Experimental method and results (continued)

解析においては、SPring-8 放射光を利用した X 線構造解析による構造情報では不十分であり、軽元素の構造情報を取得する手段としての中性子実験が不可欠である。また、ホウ酸塩ガラスにおいては、^{11}B MAS NMR 測定により得られるホウ素の配位状態も重要な構造情報であり、拘束条件として RMC 計算における構造収束に有効に機能していることを確認した。ただし、3 成分及び多成分の BPI ガラスについては、少量成分に関する構造情報が不足していることから、他の構造解析手法を併用することによる構造解析精度の向上の余地がある。



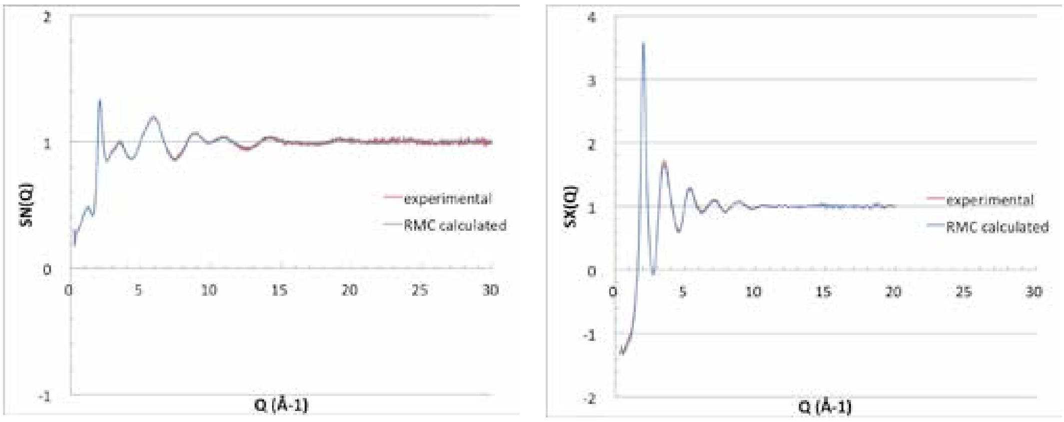
(a) 中性子構造因子　(b) X 線構造因子

図-1　2成分ガラスの実測値とRMC計算による構造因子の比較



(a) 中性子構造因子　(b) X 線構造因子

図-2　3成分ガラスの実測値とRMC計算による構造因子の比較



(a) 中性子構造因子　(b) X 線構造因子

図-3　BPIガラスの実測値及びRMC計算による構造因子の比較