

 MLF Experimental Report	提出日 Date of Report 2015年5月27日
課題番号 Project No. 2014BM0003 実験課題名 Title of experiment ガラス材料の中性子回折法による構造分析 実験責任者名 Name of principal investigator 福田 一徳 所属 Affiliation キヤノン株式会社	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 2015年3月23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. 試料は以下の組成(モル比)を持つホウ酸ガラスである。ここでの組成は作製時の仕込み量を元にしてている。 (1) $B_2O_3 : SrO = 2 : 1$ (2) $B_2O_3 : ZnO = 1 : 1$ (3) $B_2O_3 : SrO : ZnO = 12 : 3 : 5$ なお、ガラスの作製には、ホウ素を中性子散乱断面積の小さい ^{11}B に濃縮したホウ酸(濃縮度=99.7%, ヤマナカセラダイン社)を用いた。これらの試料の組成を、誘導結合プラズマ発光分光分析法により確認したところ、 B_2O_3 の組成比について、仕込み量に対し数%程度の減少が見られた。

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. 2.1. 実験方法 物質・生命科学実験施設の茨城県材料構造解析装置(iMATERIA, BL20)を用いて、上記試料の中性子回折法による測定を実施した。試料はそれぞれ粉体化してから、直径 5 mm のバナジウム管に高さ 40 mm 程度以上充填し、インジウムリボンを用いて密封した。測定時間はいずれも3時間である。なお、測定時の中性子のビームパワーは 466 KW (at 25 Hz) であり、測定モードはシングルフレームである。 2.2. 結果 得られた中性子散乱強度データを、PDFgetN [1] を用いて中性子構造因子: $S(Q)$ へ変換した。その結果を図1に示す。また、試料(1)の $S(Q)$ を、その X 線構造因子: $F(Q)$ とともに、それぞれ黒実線で図2に示す。この $F(Q)$ は、SPring-8 BL04B2 における高エネルギー X 線回折法により得たものである。また、図2に示した構造因子より得た二体相関関数: $g(r)$ を、黒実線で図3に示す。この図3において、 $F(Q)$ による $g(r)$ よりも、 $S(Q)$ によるものにおいてその強度を増大させるピークは、中性子回折において、部分 $g(r)$ に対する重み因子が大きくなる、軽元素(B, O)に由来する構造によるものと考えられる。例えば、図3において矢印で示したピークは、
--

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

B₂O₃ ガラスに存在するボロキソール環によるピーク位置と一致している[2]。試料(1)には、その赤外ラマン分光スペクトルより、ボロキソール環が存在すると考えており、図3に示した結果はこれと一致する。

図2に示した構造因子を用いて、リバースモンテカルロ(RMC)法により、ガラスの構造モデルの構築を試みた。用いた RMC ソフトウェアは、RMC++ [3] である。RMC 法によるフィッティング結果を、図2に赤破線で測定結果にそれぞれ重ねた。また同様に、RMC 法による構造モデルから得た $g(r)$ について、中性子回折および X 線回折における重みづけをしたものを図3に示した。図2より、それぞれの構造因子に対するフィッティングは良好に行えているようであるが、 $g(r)$ では測定値とフィッティング結果に差があり、特に $r = 3 \text{ \AA}$ 辺りのずれが大きい。これは、RMC 法に用いた他の配位数などの拘束条件に原因があると考えている。以上のように、構造解析について検討の余地は残すものの、 $S(Q)$ を用いた RMC による構造モデルには、 $F(Q)$ のみを用いた場合に比べ、B、O による多員環構造が増えることが確認された。

参考文献

- [1] P. F. Peterson *et al.*; J. Appl. Crystallogr. **33** (2000) 1192
 [2] Peter A. V. Johnson *et al.*; J. Non-Cryst. Solids **50** (1982) 281
 [3] O. Gereben *et al.*; J. Opt. Adv. Mater. **9** (2007) 3021

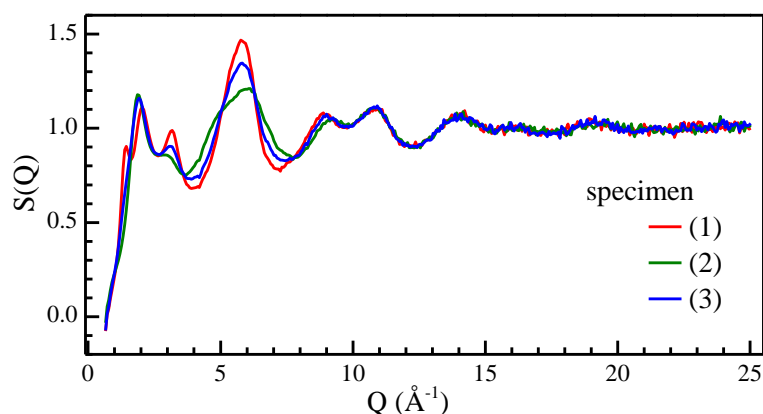


図1 各試料の中性子構造因子

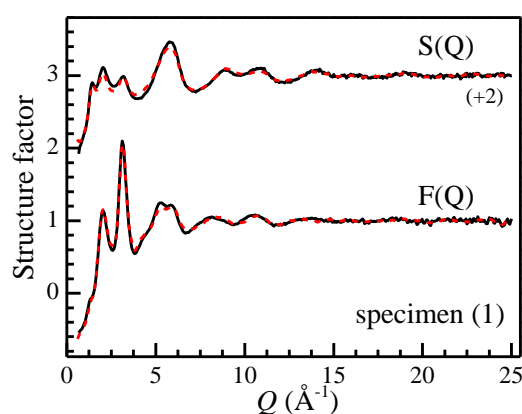


図2 試料(1)の構造因子
 中性子構造因子(上)
 X線構造因子(下)
 赤破線はRMC法による結果

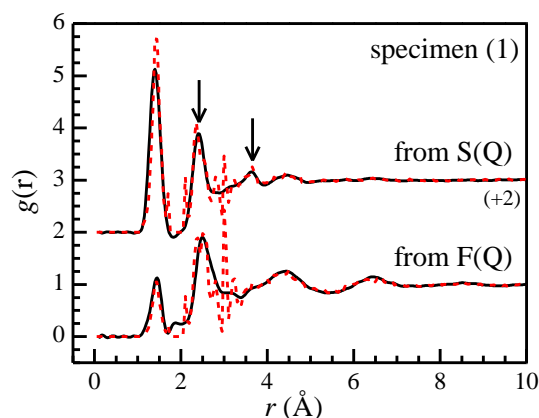


図3 試料(1)の二体相関関数
 中性子回折重みづけ(上)
 X線回折重みづけ(下)
 赤破線はRMC法による結果