

 茨城県 <small>IBARAKI Prefectural Government</small>	MLF Experimental Report	提出日(Date of Report) 2021/11/10
課題番号(Project No.) 2019PM4001 実験課題名(Title of experiment) 人材育成事業にかかるビーム利用(iMATERIA) 実験責任者名(Name of principal investigator) 石垣 徹 所属(Affiliation) 茨城大学フロンティア応用原子科学研究センター	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) 2020/2/18	

実験目的、試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、及び結論を記述して下さい。

実験結果などの内容をわかりやすくするため、適宜図表添付して下さい。

Please report experimental aim, samples, experimental method, results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 実験目的(Objectives of experiment)
<p>笠間焼は、一般的に基礎釉(福島長石白やネズミ石灰などの成分)を主として構成されている陶芸作品である。この基礎釉は大部分が非晶質相であるが、含有させるアルカリ土類金属の割合によりアノウサイト結晶相やジオプサイト結晶相が析出する。非晶質相内に析出する上記結晶相の析出条件や析出する結晶相の同定は、将来的に笠間焼の製品性能に関連する可能性がある。粉末回折実験を用いて異なるアルカリ土類金属(Mg, Ca)の割合を持つ基礎釉の構造解析を行う。</p>
2. 試料及び実験方法
Sample(s), chemical compositions and experimental procedure
2.1 試料 (sample(s))
<p>笠間焼基礎釉の1つである石灰マグネシア釉を用いる。主成分として、$(K,Na)_2Al_2SiO_6$, $Al_4Si_4O_{10}(OH)_8$, SiO_2, $CaCO_3$, $MgCO_3$ が含まれている。石灰マグネシア釉試料は粉末状態に粉碎した。</p>
2.2 実験方法(Experimental procedure)
<p>石灰マグネシア釉中に存在するジオプサイト結晶相を、iMATERIA@BL20 において粉末中性子回折実験で分析する。</p>

3. 実験結果及び考察（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 results and discussion. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.

予備実験及び比較のためにあらかじめ測定した XRD の結果、石灰マグネシア釉中には a 相(酸化マグネシウム相: $MgO(Fm-3m)$)、b 相(フォルステライト相: $Mg_2SiO_4(Pbnm)$)、c 相(ジオプサイト相: $CaMgSi_2O_6(C2_1/c)$)の3相共存結晶相であった。本実験で注目するジオプサイト相を解析すると、4e サイトの Ca と Mg はそれぞれ 0.66:0.34 と固溶していることが分かっている。また、全元素サイトの温度因子が大きく、構造同定に結論を見いだせていない。

図1に粉末中性子実験で取得した石灰マグネシア釉試料回折データのリートベルト解析結果を示す。石灰マグネシア釉試料内に存在する多くの非晶質相の影響でバックグラウンドが大きい。ため、ルジャンドル関数で正確にバックグラウンドの関数を合わせた。XRD 結果同様 a 相(酸化マグネシウム相: MgO)、b 相(フォルステライト相: Mg_2SiO_4)、c 相(ジオプサイト相: $CaMgSi_2O_6$)の3相共存結晶相構造解析を行った($R_{wp}=1.9\%$ 、 $S^2=14$)。全元素サイトの温度因子は XRD よりも小さく良好な解析結果を示した。しかしながら、ジオプサイト相の 4e サイトの Ca と Mg の固溶状態に関して、Ca:Mg=0.95:0.05 と Mg がほとんど固溶していない結果になった(図 2)。ゆえに、解析上 $CaMgSi_2O_6$ or $MgSiO_3$ でも表現可能である。中性子は Ca,Mg の散乱長 4.7 と 5.3 と結構近い値なので区別できなかった可能性がある。X 線の Ca と Mg の電子密度に差が十分存在するため、現状 $CaMgSi_2O_6$ として解釈している。

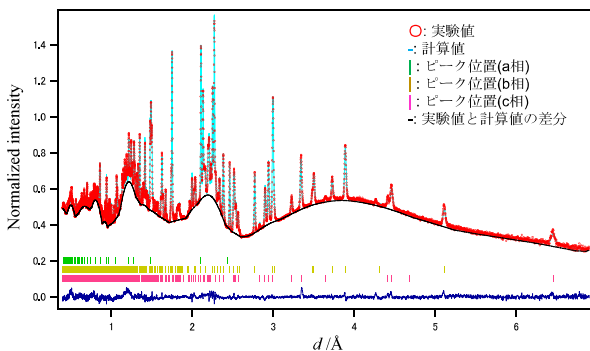


図 1 石灰マグネシア釉試料の中性子回折データリートベルト解析。

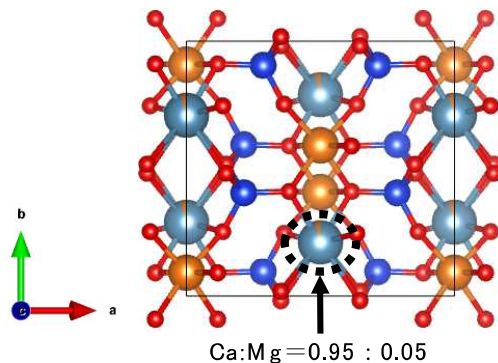


図 2 ジョプサイト相: $CaMgSi_2O_6$ の結晶構造。
4e サイトの Ca と Mg の固溶が 0.95:0.05

4. 結論(Conclusions)

笠間焼基礎釉の1つである石灰マグネシア釉試料の粉末中性子回折を iMATERIA にて実施した。構造解析結果より、良好な R 因子にて構造同定を行うことができたが、ジオプサイト相の 4e サイトの Ca と Mg の固溶状態に関してはっきりとした組成比を明らかにできなかった。今後、他の化学分析を併用することにより詳細なジオプサイト相の化学組成を明らかにしていく。